

Zentralabteilung Strahlenschutz

KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH

des Landes Nordrhein-Westfalen - e. V.

Messung der Adsorptionseigenschaften
verschiedener Filter für gasförmiges Jod

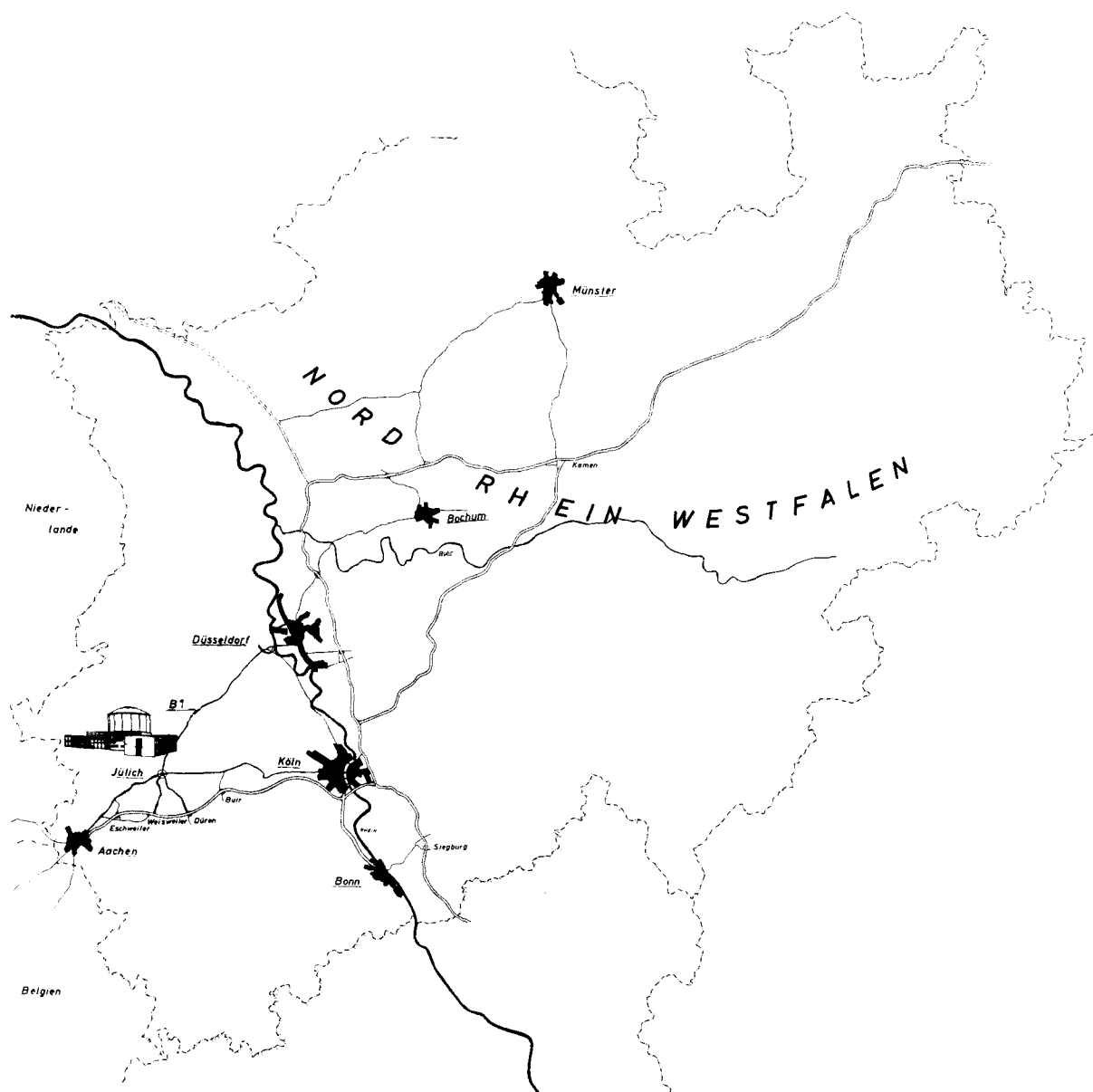
von

K. J. Vogt und J. Meringdal

Jül - 363 - ST

März 1966

Als Manuskript gedruckt



Berichte der Kernforschungsanlage Jülich – Nr. 363
 Zentralabteilung Strahlenschutz Jülich – 363 – ST

Dok.: Activated Carbon Filters
 Adsorption properties
 Gaseous Iodine
 Adsorption

DK: 546.15 : 661.183.2 : 541.183.56 : 621.039.584.733

Zu beziehen durch: ZENTRALBIBLIOTHEK der Kernforschungsanlage Jülich,
 Jülich, Bundesrepublik Deutschland

Messung der Adsorptionseigenschaften verschiedener Filter für gasförmiges Jod

von

K. J. Vogt und J. Meringdal

Inhalt

1.	<u>Aufgabenstellung</u>	
1.1	Ziel der Untersuchungen	1
1.2	Physikalische und chemische Form von Jod in der Atmosphäre	1
1.3	Untersuchte Filtermedien	3
2.	<u>Versuchsaufbau und -durchführung</u>	4
2.1	Jodquelle	5
2.2	Filterkammer	5
2.3	Detektoren	6
3.	<u>Messung der Adsorptionseigenschaften verschiedener Filter</u>	
3.1	Allgemeines zum Meßverfahren	6
3.2	Kontaminationsverluste	8
3.3	Filterwirkungsgrad in Abhängigkeit von Filterdicke und Anströmgeschwindigkeit	9
3.4	Filterwirkungsgrad in Abhängigkeit von der Konzentration des Jodangebots	16
3.5	Filterkapazität und Filterwirkungsgrad in Abhängigkeit von der Vorbelastung mit Jod	17
3.6	Filterwirkungsgrad in Abhängigkeit von der Vorbelastung durch Luftfilterung	21
3.7	Desorptionseffekte	22
4.	<u>Zusammenfassung</u>	23
	Literaturverzeichnis	25
	Verzeichnis der Abbildungen	29
	14 Abbildungen	

1. Aufgabenstellung

1.1 Ziel der Untersuchungen

Zweck der im folgenden beschriebenen Untersuchungen war, bestimmte Filtermaterialien auf ihre Verwendbarkeit als Meßfilter bei der Überwachung gasförmiger Jodemissionen aus kerntechnischen Anlagen zu prüfen. Die Messung von Filterwirkungsgraden, Filterkapazitäten, Desorptionseffekten usw. in Abhängigkeit von der Flächenbelegung, der Anströmgeschwindigkeit, der Jodkonzentration, der Vorbelastung usw. kann gleichzeitig Hinweise für die Anwendungsmöglichkeiten der untersuchten Filtermedien als ReinigungsfILTER bei der Dekontamination jodhaltiger Abluft geben.

Die Kenntnis der Filtereigenschaften sollte die Entwicklung eines Meßgerätes für die Überwachung von mit radioaktivem gasförmigem Jod kontaminierter Abluft ermöglichen. Insbesondere sollte festgestellt werden, ob die bereits vorhandenen Geräte zur kontinuierlichen Luftüberwachung durch Verwendung besonders präparierter Filter oder durch Zusatzgeräte auch für den Nachweis von Radiojod einsetzbar gemacht werden können.

Über die Filterung von gasförmigem Jod existiert eine umfangreiche Literatur. Eine Zusammenstellung und Auswertung neuerer Arbeiten zum "Nachweis von radioaktivem Jod in der Atmosphäre" wurde in einem Internen Bericht (1) vorgelegt. Einige die Abscheidung von Jod betreffende "Hinweise für die Beurteilung der Filterung und Ausbreitung kontaminierter Abluft" werden in (2) gegeben. Aus der Literatur geht hervor, daß bei den weitaus meisten Anwendungen Aktivkohle der für die Filterung von gasförmigem Jod geeignetste Adsorber ist.

1.2 Physikalische und chemische Form von Jod in der Atmosphäre

Bevor auf die Probleme der Jodabscheidung eingegangen wird, soll im folgenden ein kurzer Überblick über die physikalische und chemi-

sche Beschaffenheit des zu überwachenden atmosphärischen Jods gegeben werden.

Beim Betrieb kerntechnischer Anlagen, insbesondere bei Reaktorunfällen oder bei der Untersuchung und Aufbereitung von Spaltprodukten, besteht infolge der Flüchtigkeit von Jod die Möglichkeit, daß Jod-131 und andere Radionuklide des Jod hauptsächlich als J_2 -Dampf, der von den üblichen Aerosolfiltern nicht zurückgehalten wird, in die Atmosphäre freigesetzt werden, wo sie physikalischen und chemischen Reaktionen ausgesetzt sind. Angaben über das Verhalten des gasförmigen in die Atmosphäre eingetretenen Jods, seine Anlagerung an Aerosole bzw. seine Umwandlung in andere Jodverbindungen finden sich bei HOLLAND (3). Die physikalische und chemische Form von Jod-131 im Fallout nach Kernwaffenversuchen wird von PERKINS diskutiert (4).

Jod reagiert leicht mit atmosphärischen Spurenstoffen; In leicht alkalischen Wassertropfen gelöst oder in Gegenwart von Reduktionsmitteln wie Schwefelwasserstoff werden Jodwasserstoff, Jodide und Hypojodide gebildet. Umgekehrt können die Jodide durch Ozon, Schwefelsäure oder UV-Strahlung (Sonnenlicht) wieder zu freiem Jod oxidiert werden. Sehr leicht verbindet sich Jod mit ungesättigten organischen Verbindungen (vgl. Jodtest auf Doppelbindungen). Einige Zeit nach der Freisetzung von gasförmigem Jod bildet sich (nach vielfachen chemischen Reaktionen) ein Gleichgewichtszustand zwischen den Jodverbindungen in der Atmosphäre heraus. Im Gleichgewicht liegen etwa 50-60 % des Jod an Aerosole adsorbiert vor (vgl. Kap. 3.1), davon etwa 60 % als J_2 und J^- (Jodide), 35 % als JO_3^- (Jodate) und 5 % als JO_4^- (Perjodate). Der gasförmige Jodanteil in der Atmosphäre von 40-50 % enthält vor allem J_2 , J^- (Jodwasserstoff) und organische Jodverbindungen wie CH_3J (vgl. (5)) und C_2H_5J .

1.3 Untersuchte Filtermedien

Da die Abscheidung von an Aerosole gebundenem Jod mit Absolutfiltern keine Probleme aufwirft (vgl. (4)) und für die Aerosolaktivitätsüberwachung bereits geeignete Geräte vorliegen, wurde hier nur die Filterung von gasförmigem Jod in der überwiegend vorkommenden Form als J_2 untersucht.

Prinzipiell lassen sich für die Abscheidung von Joddampf verschiedene Verfahren angeben. Da sich Flüssigkeitsfilter (Lösungen zum Auswaschen bzw. mit chemischer Bindung des Jods) schlecht handhaben lassen, sind von vornherein feste Filter vorzuziehen. Diese können auf physikalischer Abscheidung (Ausfrieren (6), Adsorption an Aktivkohle (7)(8)(9)(10)(11)(12)(13), an Silikagel und an Molekularsieben (14)) oder auf chemischen Reaktionen beruhen (Abscheidung mit Metallen wie Cu, Ag, Zn, K, Sn, Al, Na (8) (9) (10) (15) (16) (17) oder an mit Verbindungen wie Silbernitrat, Natriumthiosulfat (9) und Kaliumjodid (7) (10) (18) getränkten Filtern). Chemische und physikalische Abscheideeffekte können auch kombiniert vorliegen.

Aus der Literatur geht hervor, daß bei den meisten Anwendungen Aktivkohlefilter für die Abscheidung von gasförmigem Jod am besten geeignet sind (9). Wir haben uns daher von vornherein auf die Untersuchung der Adsorptionseigenschaften von Aktivkohlefiltern beschränkt. Dabei wurden folgende Filtermedien getestet:

a) Aktivkohlegranulat K 229 der Drägerwerke (Lübeck)

Das Granulat K 229 ist aus Aktivkohle hergestellt, die aus Buchenholz gewonnen wird. Die Aktivkohle ist nach Firmenangaben für die Jodadsorption besonders präpariert und wird normalerweise für Atemschutzfilter verwendet. Die Granulatteilchen haben einen Durchmesser von 1,2 mm und eine mittlere Länge von 3 mm. Die Schüttdichte beträgt etwa $0,36 \text{ g/cm}^3$.

b) Aktivkohlepapierfilter Nr. 508 und 509 von Schleicher u. Schüll(Dassel)

Die Filterpapiere Nr. 508 und 509 sind auf Zellulosefaserbasis hergestellt und enthalten Einlagerungen von Aktivkohle pflanzlicher Herkunft. Die Flächendichte des Filters Nr. 508 beträgt nach Herstellerangaben 21 mg/cm^2 . Darin ist eine Aktivkohlebelegung von $8,7 \text{ mg/cm}^2$ enthalten. Beim Filter Nr. 509 beträgt die Gesamtflächendichte 15 mg/cm^2 , der Aktivkohleanteil $6,2 \text{ mg/cm}^2$. Durch das Herstellungsverfahren ergeben sich bei den einzelnen Anlieferungen Abweichungen der Flächenbelegungen von $\pm 10 \%$.

c) Aktivkohlepulver

Es wurden zwei Typen Aktivkohlepulver untersucht:

Aktivkohlepulver p. a. ⁺⁾ von Merck und

Aktivkohlepulver aus gemörsertem Kohlegranulat K 229
von Dräger.

Als Unterlage wurde das Aerosolfilter Luwa-Gelb verwendet.

Ziel der Untersuchung war festzustellen, ob das in unseren Luftüberwachungsanlagen verwendete Aerosolfilter nach geeigneter Vorbehandlung auch für die Abscheidung von gasförmigem Jod eingesetzt werden kann. Dazu wurde das Aerosolfilter vor der Jodabscheidung mit Aktivkohlepulver belegt. Außerdem wurde geprüft, wie der Filterwirkungsgrad des Luwa-Gelb-Filters für gasförmiges Jod sich durch vorherige Bestäubung des Filters mit natürlichem Aerosol ändert.

2. Versuchsaufbau und -durchführung

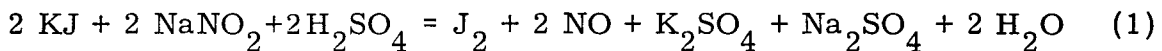
Die Versuchsanordnung, deren schematischer Aufbau Abb. 1 zu entnehmen ist, bestand im Prinzip aus der Jodquelle, der Filterkammer, den Detektoren zur Ausmessung der Filteraktivität sowie dem Luftansaugsystem mit Pumpe, Rotameter, Drosselklappe und Vorfilter.

⁺⁾ Nach Firmenangaben passieren 80-90 % des Materials ein Sieb von 44μ Maschenweite.

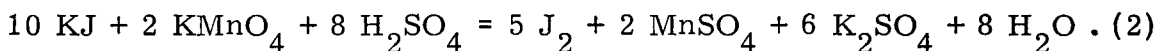
2.1 Jodquelle

In der Literatur werden eine Reihe chemischer Reaktionen zur Freisetzung von gasförmigem J_2 und technischer Verfahren für die Erzeugung von für die Abscheideuntersuchungen geeigneten Jod-Luftgemischen angegeben, die entweder auf Freisetzung von Jod aus einer Tetrachlorkohlenstofflösung über eine Düse (10), auf Sublimation (8) (19) oder auf Oxydation von Jodidlösungen mit KJO_3 , $Fe_2(SO_4)_3$, $K_2Cr_2O_7$ usw. (7) (8) (16) beruhen.

Bei unseren Versuchen gingen wir von einer KJ-Lösung aus, aus der J_2 durch Oxydation freigesetzt, durch hindurchgeleitete Luft (oder Erhitzen) aus der Lösung ausgetrieben und durch Nebenluft auf die gewünschte Konzentration verdünnt wurde. Die Oxydation erfolgte entweder mit $NaNO_2$ nach der Reaktionsgleichung



oder mit $KMnO_4$ nach der Reaktionsgleichung



Bei den meisten Versuchen wurde das J_2 nach Gleichung (1) freigesetzt. Bei dieser Reaktion entstehen allerdings neben Joddampf auch Stickoxyde, die ebenfalls in Aktivkohle abgeschieden werden können, so daß eine Verfälschung der Abscheideeigenschaften für Jod möglich ist. Bei den Experimenten mit einem größeren Jodbedarf wie der Bestimmung der Adsorptionskapazität, wurde daher die Oxydation nach Reaktionsgleichung (2) durchgeführt, wobei keine gasförmigen Reaktionsprodukte anfallen.

2.2 Filterkammer

Für die Versuche wurde eine Filterkammer aus Messing gebaut, die wie auch die mit einem Stutzen für die Jodquelle (100 ml Glaskolben) versehene Zuluftleitung zur Vermeidung von Jodkontaminationen innen

mit Abziehlack überzogen wurde. Vor der Abluftleitung befindet sich die Halterung für die Papierfilter von 50 mm effektivem Durchmesser und dahinter eine beiderseitig durch Siebe abgeschlossene Meßfilterpatrone für Kohlegranulat. Vor der Pumpe, die einen durch Drosselklappen und Nebenluft regelbaren Durchsatz von 1 bis 25 m³/h erzeugt, befindet sich eine zweite Kohlegranulatpatrone zur Abscheidung der Restjodmenge, die für die bilanzmäßige Ermittlung des Meßfilterwirkungsgrades ebenfalls ausgemessen werden muß.

2.3 Detektoren

Die Ermittlung der in den Filtern abgeschiedenen Jodmenge erfolgte bei den Papierfiltern über die Messung der β -Strahlung des radioaktiven Tracers J-131 mit Endfensterzählrohren und bei den Aktivkohlegranulatpatronen über die Messung der γ -Strahlung mit Szintillationsdetektoren. Im allgemeinen wurden die exponierten Filtermedien dazu in eine Bleiabschirmung überführt. In einzelnen Fällen (bei der Untersuchung des Abscheidevorgangs, dem Einfluß von natürlicher Aerosolaktivität und Desorptionseffekten im Luftstrom) wurde der Detektor jedoch direkt über dem Filter in die Filterkammer eingeschraubt. Dabei mußte dann ein erhöhter Nulleffekt durch Umgebungsstrahlung und durch Kontamination des Detektors in Kauf genommen werden.

3. Messung der Adsorptionseigenschaften verschiedener Filter

3.1 Allgemeines zum Meßverfahren

Zur Überprüfung der Untersuchungsmethode wurde bei den ersten Filterversuchen eine Bilanzierung des Verbleibs der ursprünglich eingesetzten Jodmenge durchgeführt. Dabei wurden gemessen der Restjodgehalt im Detektorkolben (durch Ausmessung der Lösung im Bohrlochkristall), die abgeschiedene Jodmenge im Meßfilter (Ausmessung bei Papierfiltern in einer Bleikammer unter einem Endfensterzählrohr, bei Aktivkohlepatronen nach Entleerung in die Ringschale eines Szintillationsmeßplatzes) und im "Restfilter" (ebenfalls durch Ausmessung des Granulats in einer Ringschale mit einem Szintillationsdetektor).

Voruntersuchungen ergaben, daß die Restjodmenge in der Quelle im allgemeinen unter 0,5 % lag und vernachlässigt werden konnte. Die im Meßfilter und im Restfilter abgeschiedenen Jodmengen addierten sich aber nicht zu 100 % der Ausgangsmenge. Es zeigte sich, daß dieser Aktivitätsverlust auf Abscheidungen von Jod an den Gerätewandungen zurückzuführen war (vgl. 3.2).

Die These, daß ein erheblicher Teil des gasförmigen Jod sich durch Anlagerung an Aerosole der Filterung durch Aktivkohlegranulat entzogen haben könnte, wurde experimentell (durch Filterung der Zuluft mit einem Aerosolfilter) und theoretisch (durch eine Abschätzung der Anlagerungszeit) widerlegt. Die Rechnung ergibt unter Zugrundelegung der für die Anlagerung von RaA und ThB an natürliche Aerosole experimentell bestätigten Adsorptionstheorie beispielsweise für Aerosole mit 10^4 Teilchen/cm³ mit einem mittleren Teilchenradius von $0,1 \mu$, der klein ist gegen die mittlere freie Weglänge des Jodmoleküls in Luft, eine Halbwertszeit für die Jodanlagerung von etwa 20 s (20) (21). Aus der Geometrie unserer Apparatur und dem Luftdurchsatz ergab sich, daß sich höchstens 0,4 % der J₂-Moleküle auf dem Weg zum Aktivkohlefilter an Aerosole anlagern könnten. Eine weitere Abschätzung zeigte zudem, daß bei der vorliegenden Jodkonzentration die zur Verfügung stehenden Aerosolpartikel bei weitem nicht für die Jodadsorption ausreichen. Die tatsächlich zu erwartende Jodadsorption an Aerosole und damit die Abscheidung durch Aerosolfilter ist also auf jeden Fall vernachlässigbar.

Trotzdem kann eine Vorfilterung der Zuluft nützlich sein, da sie bei der Untersuchung von Aktivkohlepapierfiltern, die auch Aerosole zurückhalten, die Abscheidung natürlich radioaktiver Aerosole (Rn- und Tn-Folgeprodukte) auf dem Jodfilter verhindert. Andernfalls wäre vor der Jodmessung der radioaktive Zerfall der natürlichen Aerosolaktivität abzuwarten.

Die relative Feuchtigkeit der gefilterten Luft hatte bei unseren Versuchen keinen Einfluß auf die Kontamination der Apparatur oder auf die Adsorptionseigenschaften der Filter (vgl. (13) (16) (19)).

3.2 Kontaminationsverluste

Aus der Literatur (6) (13) (16) (22) war bekannt, daß ein erheblicher Bruchteil des eingesetzten Jods durch Adsorption an die Gerätewandungen verloren geht, besonders bei frisch bearbeiteten oder durch Säuren angeätzten Oberflächen. Die Bilanzauswertung kann dadurch empfindlich gestört werden. Da die Kontamination von Versuchsaufbau und -durchführung abhängt, lassen sich die Literaturwerte nicht direkt vergleichen. Es besteht jedoch Übereinstimmung darin, daß die Adsorption an Messing und Kupfer verglichen mit Glas und einigen Kunststoffen relativ hoch ist.

In Vorversuchen haben wir daher die Jodadsorption in der Apparatur untersucht. Da sich die Kontamination der Geräteoberfläche wegen ihrer komplizierten Geometrie nicht direkt messen ließ, wurde der Kontaminationsverlust aus der Aktivitätsbilanz errechnet.

Ohne Vorbehandlung der Wandungen unserer Filterkammer aus Messing ergaben sich zunächst sehr hohe Kontaminationsverluste von etwa 20-50 %. Nach einer Reinigung der Apparatur mit verdünnter Salpetersäure gingen sogar einmal 75 % der eingesetzten Jodmenge durch Adsorption an der angeätzten Oberfläche verloren. Die Adsorptionsverluste ließen sich durch Anstreichen aller mit Jod in Berührung kommenden Messingoberflächen mit einem Abziehlack, dessen Verwendung zudem eine einfache Dekontamination der Apparatur ermöglichte, auf 10-20 % reduzieren. Die Abhängigkeit der Kontamination vom Luftdurchsatz zeigt Abb. 2 . Bei einem Versuch mit einer einfachen Glasapparatur lag der Kontaminationsverlust unter 1 %.

3.3 Filterwirkungsgrad in Abhängigkeit von Filterdicke und Anströmgeschwindigkeit

Da die Kontaminationsverluste relativ stark schwankten, wurde bei der Ermittlung der Filterwirkungsgrade von der im Meßfilter und im Restfilter gemessenen Jodaktivität ausgegangen.

Bei den mit Aktivkohle präparierten Papierfiltern war es im allgemeinen möglich, durch Hintereinanderschalten zweier gleichartiger Meßfilter den Filterwirkungsgrad nach der Formel

$$\eta = 1 - n_2/n_1 \quad (n_i = \text{Zählrate des i. Meßfilters}) \quad (3)$$

direkt aus den Impulsraten zu berechnen. Diese Beziehung gilt unter der für nicht selektive Filterung sicher erlaubten Annahme exponentieller Abscheidung mit der Filterdicke.

Wenn die Doppelmeßfiltermethode aus technischen Gründen nicht anwendbar war oder wenn die verwendeten Filter unterschiedliche Abscheideeigenschaften hatten, wurde der Filterwirkungsgrad des Meßfilters durch Vergleich der Aktivitäten des Meßfilters und des Restfilters bestimmt:

$$\eta = \frac{A_1}{A_1 + A_2} \quad (4)$$

(A_1 = Aktivität des Meßfilters , A_2 = Aktivität des Restfilters).

Die Aktivkohlemenge des Restfilters war stets so bemessen (ca. 100 cm³) daß eine praktisch hundertprozentige ($\geq 99,8$ %) Restabscheidung gegeben war. Bei dieser Methode mußten die Detektoren für die jeweilige Meßgeometrie mit J-131 geeicht werden.

Der Filterwirkungsgrad η des Aktivkohlegranulats K 229 wurde in Abhängigkeit von der Dicke der Aktivkohleschicht in der Filterpatrone und vom Luftdurchsatz gemessen. Die Resultate sind in Tab. 1 zusammengestellt. Um von der Filterfläche unabhängig zu werden,

wurde der Volumendurchsatz in die Anströmgeschwindigkeit^{+) umgerechnet. Außer der Filterdicke x wurde zur besseren Vergleichbarkeit verschiedener Filtertypen die Flächenbelegung des Filters mit Aktivkohle ρx angegeben.}

Tabelle 1

Filterwirkungsgrad von Aktivkohlegranulat Dräger K 229
für gasförmiges Jod (J_2)

Aktivkohleschicht		Anström- geschwindigkeit	Filterwirkungs- grad
cm	mg/cm ²	m/s	%
0,5	180	0,15	97
		0,3	92
		0,7	85
		1,4	79
		2,1	74
		2,8	70
		3,5	65
1,0	360	0,15	99,9
		0,3	99,5
		0,7	97,3
		1,4	96,0
		2,1	93,6
		2,8	90,3
		3,5	88,5
2,0	720	0,15	> 99,9
		0,3	> 99,9
		0,7	> 99,9
		1,4	99,8
		2,1	99,5
		2,8	99,1
		3,5	98,5

In Abb. 3 ist die Durchlässigkeit des Filters, d.h. der nicht abgeschiedene Bruchteil $1-\eta$ in Abhängigkeit von der Flächenbelegung

^{+) Anströmgeschwindigkeit = Volumendurchsatz/Filterquerschnitt}

dargestellt, wobei sich im halblogarithmischen Maßstab Geraden ergeben. Parameter ist die Anströmgeschwindigkeit. Erwartungsgemäß erhält man eine exponentielle Abnahme der Durchlässigkeit mit der Flächenbelegung nach der Beziehung

$$D = 1 - \eta = e^{-\mu x} = e^{-\left(\frac{\mu}{\rho}\right) \rho x} \quad (5)$$

Aus der Steigung der Geraden lassen sich der Adsorptionskoeffizient μ bzw. der Massenadsorptionskoeffizient μ/ρ ermitteln. Abb. 4 zeigt den Massenadsorptionskoeffizient μ/ρ in Abhängigkeit von der Anströmgeschwindigkeit. Da sich im doppeltlogarithmischen Maßstab eine Gerade ergibt, ist der Massenadsorptionskoeffizient eine Potenzfunktion der Anströmgeschwindigkeit

$$\frac{\mu}{\rho} = a u^b \quad (6)$$

Damit folgt für den Filterwirkungsgrad

$$\eta = 1 - e^{-a u^b \rho x} \quad (7)$$

Aus der Geraden lassen sich die Konstanten a und b bestimmen (Tab. 4). Nach (7) läßt sich dann der Filterwirkungsgrad für das Kohlegranulat für alle im untersuchten Bereich liegenden Aktivkohlebelegungen (ρx) in Abhängigkeit von der Anströmgeschwindigkeit u (m/s) bestimmen.

Obwohl die Aktivkohlepapierfilter Nr. 508 und 509 nur eine relativ geringe Flächenbelegung von 8,7 bzw. 6,2 mg/cm² Aktivkohle enthalten, ergeben sich wegen der aus der Feinkörnigkeit folgenden großen effektiven Oberfläche doch sehr gute Abscheideeigenschaften für Jod. Die bezogen auf die Massenbelegung wesentlich effektivere Jodabscheidung wird allerdings mit einem hohen Druckabfall am Filter erkauft⁺⁾ , so daß an die Saugaggregate höhere Anforderungen zu stellen

⁺⁾ Für ein Filter von 5 cm Durchmesser und bei einem Luftdurchsatz von 5 m³/h beträgt der Druckabfall 310 torr am Filter Nr. 508 und 230 torr am Filter Nr. 509

sind. Um hohe Luftdurchsätze zu erreichen, muß entweder mit Pumpen oder bei Verwendung von Gebläsen mit großflächigen Filtern gearbeitet werden.

Tabelle 2

Filterwirkungsgrad von Aktivkohlepapierfilter für gasförmiges Jod (J_2)

Aktivkohle- filterpapier	Aktivkohle- belegung	Anström- geschwindigkeit	Filterwirkungs- grad
	mg/cm ²	m/s	%
Schleicher u. Schüll Nr. 508	8,7	0,14	99,8
		0,42	99,7
		0,56	99,5
		0,77	99,2
Schleicher u. Schüll Nr. 509	6,2	0,14	98,2
		0,42	96,8
		0,84	95,8
		1,2	95,1

Die bei verschiedenen Anströmgeschwindigkeiten gemessenen Filterwirkungsgrade der beiden Filtertypen wurden in Tab.2 zusammengestellt. Abb. 5 zeigt die Abhängigkeit der Durchlässigkeit von der Anströmgeschwindigkeit. Da auch bei den Aktivkohlepapierfiltern von einer exponentiellen Abhängigkeit der Durchlässigkeit von der Filterbelegung mit Aktivkohle ausgegangen werden kann, lassen sich die Durchlässigkeiten für mehrere Filterpapierlagen und die Massenadsorptionskoeffizienten berechnen. In doppeltlogarithmischer Darstellung ergeben sich wieder Geraden für den Massenadsorptionskoeffizienten in Abhängigkeit von der Anströmgeschwindigkeit (Abb.4), aus denen sich die Konstanten der Gleichungen (6) und (7) berechnen lassen (Tab.4).

Die Verbesserung des Filterwirkungsgrades durch Verwendung mehrerer Filterlagen findet in der Praxis eine Grenze durch den wachsenden Filterwiderstand. Für Meßzwecke ist bei den beiden Aktivkohlepapierfiltern eine Filterlage sogar noch bei höheren als den untersuchten Anströmgeschwindigkeiten als ausreichend anzusehen. Ein weiterer Vorteil dieses Filtertyps ist darin zu sehen, daß wegen des Faseranteils auch Aerosole (mit einem etwa gleich hohen Filterwirkungsgrad^{+) abgeschieden werden. Dadurch erübrigt sich eine getrennte Absolutfilterung, es sei denn, die gasförmig vorliegende Jodaktivität soll von der Aerosolaktivität (an Aerosole gebundenes Jod, feste Spaltprodukte, Rn-Folgeprodukte usw.) diskriminiert werden.}

Das Rückhaltevermögen von nicht präparierten Aerosolfiltern für gasförmiges Jod ist sehr gering. Für das Absolutfilter Luwa-Gelb betrug der Filterwirkungsgrad bei einer Anströmgeschwindigkeit von 1,8 m/sec nur 0,15 %. Aerosolfilter sind daher als Meßfilter (und erst recht als ReinigungsfILTER) für Joddampf nicht geeignet. Andererseits ist festzustellen, daß eine Vorfilterung mit einem Absolutfilter die nachfolgende Messung des Jod in einer Aktivkohlepatrone nicht stört.

Darüber hinaus zeigte sich, daß schon die vorherige Bestäubung des Filters Luwa-Gelb mit natürlichem Aerosol aus 45 m³ Luft genügte, den Wirkungsgrad für gasförmiges Jod um das 10-fache auf 1,3 % zu erhöhen. Das Abscheidevermögen von Aerosolfiltern für gasförmiges Jod hängt also auch von der zur Zeit des Jodangebots verstrichenen Filterdauer nach dem letzten Filterwechsel ab.

^{+) Der Filterwirkungsgrad der Aktivkohlepapierfilter wurde nach der Doppelfiltermethode für natürlich radioaktive Aerosole gemessen und betrug für das Filter Nr. 508 99,7 % bei einer Anströmgeschwindigkeit von 0,6 m/s, für das Filter Nr. 509 98,7 % bei einer Anströmgeschwindigkeit von 0,9 m/s. Da man wegen der Verteilung der Partikeldurchmesser des Aerosols mit einer Selektivität der Filterung rechnen muß, dürfte der effektive Filterwirkungsgrad jedoch etwas niedriger liegen.}

Trotz der schlechten Abscheideeigenschaften von Aerosolfiltern für J_2 , ist nach Kap. 1.2 und 3.1 ein Nachweis gasförmiger Jodemissionen mit in der Umgebung betriebenen Aerosolfiltergeräten nicht ausgeschlossen, da nach physikalischen und chemischen Prozessen in der Atmosphäre nach längerer Transportzeit etwa 50 % des ursprünglich gasförmigen Jod an Aerosole angelagert vorliegen. Daher kann in der Praxis der Umgebungsüberwachung Aerosolfiltergeräten für den Jodnachweis doch eine gewisse Bedeutung zukommen.

Für Absolutmessungen von gasförmigen Jodkontaminationen können Aerosolfilter verwendbar gemacht werden durch Beschichtung des Filters mit Aktivkohlepulver. Wir verwendeten hierfür gemörsertes Aktivkohlegranulat K 229 von Dräger und Aktivkohle p.a. von Merck. Eine relativ homogene Flächenbelegung läßt sich erreichen, indem man das Aktivkohlepulver dem turbulenten Zuluftstrom beigibt. Schon bei Flächenbelegungen von 1 mg/cm^2 erhält man im untersuchten Bereich der Anströmgeschwindigkeit von 0,3 bis 1,9 m/s Filterwirkungsgrade von über 50 %, die sich bei dickeren Aktivkohleschichten noch verbessern lassen (Tab. 3). Allerdings zeigt eine Darstellung des Massenadsorptionskoeffizienten in Abhängigkeit von der Anströmgeschwindigkeit erhebliche Streuungen der Einzelwerte (Abb. 4). Trotzdem ist es möglich, auch hier eine Ausgleichsgerade zu finden, aus der die Abscheidekonstanten der beiden untersuchten Aktivkohlepulver angenähert bestimmt werden können (Tab. 4).

Wegen der großen Streuungen empfiehlt es sich, für Absolutmessungen mit einem möglichst hohen Filterwirkungsgrad zu arbeiten. In diesem Fall erhält man auch keine Selektivität zwischen Joddampf- und Aerosolfilterung. Der Wirkungsgrad des Luwa-Gelb-Filters für natürliche Aerosole liegt im betrachteten Bereich der Anströmgeschwindigkeit zwischen 90 und 100 %.

Tabelle 3

Filterwirkungsgrad von Aktivkohlepulver

(in homogener Flächenbelegung auf dem Aerosolfilter Luwa-Gelb)

für gasförmiges Jod (J_2)

Aktivkohlepulver	Flächenbelegung	Anström- geschwindigkeit	Filterwirkungs- grad
	mg/cm ²	m/s	%
Aktivkohle- granulat K 229 , gemörsert (Dräger)	1	0,3	80
	1	0,7	69
	1	1,8	55
	2	0,3	87
	2	0,7	91
	5	0,8	97
	5	1,4	92
Aktivkohle p.a. (Merck)	1	0,3	85
	1	0,7	70
	1	1,0	67
	1	1,9	63
	2	0,3	95
	2	0,7	88
	5	1,2	97

Tabelle 4

Konstanten der Abscheidegleichungen (6) und (7)

Aktivkohletyp	a	b
Aktivkohlegranulat K 229	0,0097	- 0,35
Aktivkohlepapierfilter Nr. 508	0,58	- 0,13
Aktivkohlepapierfilter Nr. 509	0,51	- 0,13
Aktivkohlepulver (Dräger, Merck)	1,1	- 0,37

Die in Tab. 4 aufgeführten Werte der Abscheidekonstanten a und b , die sich ergeben, wenn in Gl. (6) der Massenadsorptionskoeffizient in cm^2/mg und die Windgeschwindigkeit in m/s angegeben werden, erlauben einen Vergleich der Filtereigenschaften der verschiedenen Aktivkohletypen (vgl. auch Abb. (4)). Danach erhält man bei gleicher Massenbelegung für die beiden Aktivkohlepulver die besten Filtereigenschaften. (Bei diesem Vergleich wird von den vermutlich präparationstechnisch bedingten starken Schwankungen der Abscheideeigenschaften abgesehen.) Allerdings ist die Abhängigkeit von der Anströmgeschwindigkeit verhältnismäßig groß. Für das Aktivkohlegranulat K 229 von Dräger erhält man den gleichen Exponenten b der Potenzfunktion wie für das daraus durch Mörsern gewonnene Aktivkohlepulver. Der Faktor a , der offensichtlich die effektive Oberfläche pro Gewichtseinheit der untersuchten Aktivkohle beschreibt, ist entsprechend der kleineren Korngröße bei dem Aktivkohlepulver um mehr als zwei Größenordnungen höher als bei Granulat. Die für die Aktivkohlepapierfilter Nr. 508 und 509 ermittelten Abscheidekonstanten b sind, da nach Herkunft und Körnungsgrad von der gleichen Aktivkohle ausgegangen wurde, erwartungsgemäß gleich groß und ergeben im Vergleich zu den übrigen Filtermedien nur eine geringe Abhängigkeit der Filtereigenschaften von der Anströmgeschwindigkeit. Der geringfügige Unterschied zwischen den Konstanten a läßt sich auf im Rahmen der Fertigungstoleranzen liegende Abweichungen von den nach Firmenangaben vorliegenden Aktivkohlebelegungen der beiden Filter zurückführen.

3.4 Filterwirkungsgrad in Abhängigkeit von der Konzentration des Jodangebots

Wenn die Jodadsorption in Aktivkohle eine Gleichgewichtsreaktion ist, die dem Massenwirkungsgesetz unterliegt, könnte der Filterwirkungsgrad von der Konzentration des Jodangebots abhängen ⁺⁾ .

⁺⁾ Die Temperaturabhängigkeit der Jodabscheidung wurde nicht untersucht. Alle Messungen wurden bei Zimmertemperatur durchgeführt. Die Literaturangaben stimmen darin überein, daß zwischen Zimmertemperatur und 100°C höchstens eine sehr geringe Temperaturabhängigkeit des Filterwirkungsgrades (7) (8) (15) (19) besteht.

Deshalb wurde experimentell geprüft, ob bei den verschiedenen Filtermedien eine Abhängigkeit der Filtereigenschaften von der Jodkonzentration vorliegt. Damit dieser Effekt nicht durch die Verminderung des Filterwirkungsgrades durch Sättigung der Adsorptionskapazität überdeckt wird, durfte dabei nur mit relativ geringen Jodmengen gearbeitet werden.

Bei Versuchen mit Aktivkohlegranulat im untersuchten Konzentrationsbereich von 0,6 bis 300 mg Jod/m³ Luft konnte keine signifikante Änderung des Filterwirkungsgrades festgestellt werden.⁺⁾ Auch bei Experimenten mit den Aktivkohlepapierfiltern Nr. 508 und Nr. 509 ergab sich für trägerfreies J-131 in einer Konzentration von etwa 10⁻¹² mg Jod/m³ Luft, verglichen mit den Versuchen im Bereich von 1-10 mg Jod/m³, in dem die übrigen Messungen vorgenommen wurden, kein signifikanter Unterschied der Filterwirkungsgrade. Nach den Meßergebnissen war zwar bei trägerfreien Versuchen ein geringfügig höherer Filterwirkungsgrad zu verzeichnen. Doch kann dieser geringe Unterschied bereits durch den Verbrauch eines kleinen Teils der effektiven Oberfläche der Aktivkohle zu erklären sein (vgl. 3.5). Auf jeden Fall ist die Konzentrationsabhängigkeit des Filterwirkungsgrades aber als geringfügig und im allgemeinen vernachlässigbar anzusehen. Wir befinden uns damit in Übereinstimmung mit anderen Autoren (8), die im Bereich von 10⁻⁸ bis 10² mg Jod/m³ Luft keine Abhängigkeit des Filterwirkungsgrades von der Jodkonzentration nachweisen konnten.

3.5 Filterkapazität und Filterwirkungsgrad in Abhängigkeit von der Vorbelastung mit Jod

Für die Bemessung der Aktivkohlebelegung und der optimalen Standzeit von Jodfiltern ist die Kenntnis der Filterkapazität für Jod und der Abnahme des Filterwirkungsgrades infolge steigender Vorbelastung des Filters mit Jod erforderlich.

^{+) Die Messungen erfolgten bei einer Anströmgeschwindigkeit von 1,4 m/s.}

Da die Kapazität eines Adsorbers mit der kritischen Temperatur des adsorbierten Stoffes in Zusammenhang steht (je leichter sich ein Gas verflüssigen läßt, desto besser wird es im allgemeinen adsorbiert), ergibt sich für gasförmiges Jod (J_2) eine sehr gute Filterkapazität von Aktivkohle. Das spricht auch dafür, daß Jod andere vorher adsorbierte Stoffe aus der Aktivkohle verdrängen kann.

Für Jodwasserstoff und organische Jodverbindungen sind keine Messungen der Adsorptionskapazität bekannt. Da die (statistischen) Adsorptionskapazitäten von Aktivkohle für eine Reihe von Gasen (23) (24) (25), in Abhängigkeit von der kritischen Temperatur graphisch dargestellt, recht gut auf einer Kurve liegen, lassen sich die Adsorptionskapazitäten von HJ , CH_3J und C_2H_5J aus den bekannten kritischen Temperaturen abschätzen (Abb. 6). Daraus ergeben sich für diese Jodverbindungen etwas schlechtere Adsorptionseigenschaften als für J_2 .

Ähnliche Resultate für die Adsorptionskapazität von Aktivkohle für Jod erhält man ausgehend von der Annahme, daß Jod als monomolekulare Schicht auf der Aktivkohle adsorbiert wird, wobei sich bei hexagonaler dichtester Kugelpackung eine Jodbelegung von ca. $0,3 \mu g/cm^2$ ergibt (20) (26). Mit einer effektiven Oberfläche von $600-1200 m^2/g$ Aktivkohle (27) erhält man dann bei statischer Adsorption eine Kapazität von $2-4 g Jod/g$ Aktivkohle (vgl. (25)).

Einige Untersuchungen der Adsorptionskapazität von durchströmten Aktivkohlefiltern, d.h. unter dynamischen Bedingungen, wurden mit Aktivkohlegranulatpatronen und Aktivkohlepapierfiltern durchgeführt. Bei den Versuchen mit Aktivkohlegranulat wurde schrittweise jodhaltige Luft mit $200 mg Jod/Charge$ durch eine Patrone mit $2 g$ Granulat hindurchgesaugt⁺⁾ und die Zunahme der Jodmenge im Filter gemessen (Abb. 7). Ähnliche Versuche wurden mit dem Aktivkohlepapierfilter 508

⁺⁾ Aktivkohlebelegung $250 mg/cm^2$, Luftdurchsatz ca $1 m^3/Charge$, Anströmgeschwindigkeit $1,4 m/s$.

vorgenommen⁺⁾ , wobei wegen der geringeren Jodbelegung eine Stufung von 20 mg Jod/Charge verwendet wurde (Abb. 8). Um zu vergleichbaren Werten zu kommen, wurden die dem Filter zugeführten und die adsorbierten Jodmengen auf die Gewichtseinheit Aktivkohle bezogen.

Die ersten Versuchsreihen waren mit Jod durchgeführt worden, das nach Reaktionsgleichung (1) durch Oxydation von KJ-Lösung mit NaNO_2 erzeugt worden war (gestrichelte Kurven). Da hierbei größere Mengen nitroser Gase entstehen, die teilweise ebenfalls von Aktivkohle adsorbiert werden (vgl. Abb. 6), konnte angenommen werden, daß die Adsorptionskapazität der Filter zum Teil von Stickoxyden verbraucht und der für die Jodadsorption gemessene Wert dadurch verfälscht wird. Durch eine zweite Versuchsreihe (ausgezogene Kurven), bei der die Oxydation mit KMnO_4 erfolgte, wobei keine Fremdgase entstehen, wurde diese Vermutung bestätigt, d.h. es ergibt sich im ungestörten Fall eine höhere Adsorptionskapazität für Jod.

Da in Abb. 7 und 8 der Übergang des linearen Anstiegs der adsorbierten Jodmenge in den Sättigungswert nur langsam erfolgt, läßt sich die Adsorptionskapazität genauer aus dem Verhalten des Filterwirkungsgrades ermitteln.

In Abb. 9 und 10 ist der (integrale) Filterwirkungsgrad für Aktivkohlegranulat und Aktivkohlepapierfilter als Funktion des Jodangebots aufgetragen. Die Kurven wurden aus Abb. 7 und 8 hergeleitet, in dem die im Meßfilter abgeschiedenen Jodmengen auf die gesamten dem Filter angebotenen Jodmengen bezogen wurden.

Noch aufschlußreicher ist jedoch die hiervon abgeleitete Abhängigkeit des (differentiellen) Filterwirkungsgrades von der jeweils vorliegenden Vorbelastung des Filters. Abb. 11 und 12 ist zu entnehmen, mit

⁺⁾ Aktivkohlebelegung $8,7 \text{ mg/cm}^2$, Luftdurchsatz ca. $1 \text{ m}^3/\text{Charge}$, Anströmgeschwindigkeit $0,6 \text{ m/s}$.

welchem Filterwirkungsgrad eine zusätzliche (infinitesimale) Jodmenge adsorbiert wird, nachdem im Aktivkohlegranulat bzw. Aktivkohlepapierfilter schon bestimmte Jodmengen abgeschieden sind. Die absolute Adsorptionskapazität ist erreicht, wenn die Jodmenge im Filter ihren Sättigungswert erreicht, d.h. der (differentielle) Filterwirkungsgrad gegen null geht. Sie beträgt für Aktivkohlegranulat im ungestörten Fall (ausgezogene Kurve) etwa 1 g Jod/g Aktivkohle. Wenn außer Jod noch Fremdgase (hier Stickoxyde) abgeschieden werden, wird dadurch die Adsorptionskapazität für Jod vermindert. Für das Aktivkohlepapierfilter Nr. 508 liegt die absolute Adsorptionskapazität niedriger⁺⁾ , nämlich bei etwa 0,4 g Jod/g Aktivkohle für reine Jodbelastungen bzw. bei entsprechend niedrigeren Werten, wenn adsorbierbare Fremdgase einen Teil der Kapazität verbrauchen.

In der Praxis wird man jedoch die Aktivkohlefilter schon wechseln müssen, bevor eine Sättigung mit Jod erreicht wird, da der Filterwirkungsgrad schon vorher sehr stark zurückgeht. Wenn man bei der Verwendung von Aktivkohlefiltern für Meßzwecke eine Abnahme des anfänglichen Filterwirkungsgrades um etwa 20 % zulassen will, ergibt sich für Aktivkohlegranulat eine nutzbare effektive Adsorptionskapazität von 0,8 g Jod/g Aktivkohle. Für das Aktivkohlepapierfilter Nr. 508 läge die effektive Kapazität sogar nur bei 0,2 g Jod/g Aktivkohle. Für ReinigungsfILTER wären im allgemeinen wesentlich höhere Anforderungen an einen konstanten Filterwirkungsgrad zu stellen, so daß die nutzbare Filterkapazität hier unter 0,1 g Jod/g Aktivkohle liegen dürfte. Da bei kerntechnischen Anwendungen meistens von trägerfreiem Jod ausgegangen werden kann und die spezifische Aktivität von J-131 beispielsweise $1,23 \cdot 10^5$ Ci/g beträgt, ergeben sich auch bei der Filterung hoher

⁺⁾ Die angegebenen Werte gelten nur für die speziellen Versuchsbedingungen. Da die Messungen bei verschiedener Anströmgeschwindigkeit vorgenommen wurden, sind die Adsorptionskapazitäten der verschiedenen Filtermedien nur bedingt vergleichbar.

Jodaktivitäten sehr lange potentielle Standzeiten für die Jodfilter. In der Praxis, beispielsweise bei der Messung gasförmiger Jodemissionen und bei der Umgebungsüberwachung, spielt daher bei der Bemessung optimaler Filterstandzeiten nicht die Kapazitätsabsättigung durch Jod, sondern die Verschlechterung der Filtereigenschaften durch in der durchgesetzten Luft enthaltene adsorbierbare Fremdgase oder durch Aerosole die entscheidende Rolle.

3.6 Filterwirkungsgrad in Abhängigkeit von der Vorbelastung durch Luftfilterung

Zur Abschätzung der Abnahme des Filterwirkungsgrades mit steigender Vorbelastung der Filter durch Fremdgase und Aerosole wurde eine Versuchsreihe mit dem Aktivkohlepapierfilter Nr. 508 durchgeführt. Dabei wurde der Jodfilterwirkungsgrad von 20 cm² großen Filtern bestimmt, die durch Hindurchsaugen verschiedener Mengen Luft vorbelastet waren. Wie Abb. 13 zeigt, nimmt beispielsweise der mit frischem Filter (bei einer bestimmten Anströmgeschwindigkeit) gemessene Filterwirkungsgrad von 99 % für ein durch 400 m³ durchgesaugte Luft vorbelastetes Filter auf 75 % ab⁺). Man kann der graphischen Darstellung entnehmen, daß höchstens 200 m³ Luft durchgesaugt werden dürfen, wenn der Filterwirkungsgrad um nicht mehr als 10 % sinken soll. Wenn für das Filter (aus betrieblichen Gründen) eine Standzeit von 1 Woche gefordert würde, wäre der Luftdurchsatz auf etwa 1 m³/h zu begrenzen.

Für Kohlegranulat K 229 von Dräger wurde der Einfluß der Vorbelastung auf den Filterwirkungsgrad nur stichprobenweise ermittelt. Um den Effekt möglichst empfindlich zu messen, wurde der Versuch mit einer dünnen Granulatschicht von 180 mg/cm² bei einem Filterdurchmesser von 5 cm und einer hohen Anströmgeschwindigkeit von 2,8 m/s durchgeführt.

⁺) Der Staubgehalt der Luft betrug etwa 0,3 mg/m³. Die maximale Flächenbelegung des Staubes auf dem Filter lag bei 6 mg/cm².

Der Filterwirkungsgrad von frischem Aktivkohlegranulat betrug bei den Versuchsbedingungen 68 %. Durch Filterung von 3000 m^3 Luft (das entspricht etwa einem Luftdurchsatz von $20 \text{ m}^3/\text{h}$ über 1 Woche) vorbelastete Granulatpatronen hatten demgegenüber nur noch einen Abscheidegrad von 53 %. Durch Verwendung dickerer Granulatschichten läßt sich natürlich auch bei einer Vorbelastung mit 3000 m^3 Luft ein praktisch beliebig guter Filterwirkungsgrad erreichen.

Um Vorbelastungen zu vermindern, wird man im allgemeinen vor der Jodfilterung eine Absolutfilterung der Aerosole vornehmen⁺⁾ . Damit würden nur noch die adsorbierbaren Fremdgase zur Vorbelastung beitragen. Versuche mit vorgefilterter Luft wurden nicht durchgeführt. Auf jeden Fall dürften sich bei Vorfilterung längere Standzeiten der Jodfilter ergeben.

3.7 Desorptionseffekte

Bei der Verwendung von Jodfiltern als Reinigungsfilter muß gefragt werden, ob die Abscheidung im Filter endgültig ist oder ob durch Desorptionseffekte ein Teil der ausgefilterten Jodmenge wieder freigesetzt werden kann. Zur Prüfung des Desorptionsverhaltens wurden einige orientierende Messungen durchgeführt. Dabei wurde nach Beendigung der Jodabscheidung längere Zeit jodfreie, vorgefilterte Luft durch das Filter gesaugt und die Abnahme der Jodaktivität auf dem Filter, bzw. die Zunahme der Jodaktivität auf einem nachgeschalteten frischen Filter in Abhängigkeit von der durchgesaugten Spülluftmenge ermittelt.

Die Versuche ergaben bei gleicher Spülluftmenge eine umso stärkere prozentuale Desorption, je geringer die Aktivkohlebelegung des Filters war. Als Extremfall kann die Desorption am nicht mit Aktivkohle präparierten Aerosolfilter Luwa-Gelb angesehen werden: Hier ging

⁺⁾ Für die meisten Überwachungszwecke ist neben Aktivkohlepatronen zur Abscheidung des gasförmigen Jod zum Nachweis aerosolförmig vorliegender Luftkontaminationen ohnehin eine Verwendung von Schwebstofffiltern erforderlich.

die Jodmenge im Filter bereits nach etwa 10 m^3 Spülluft auf die Hälfte zurück, änderte sich danach aber nur noch langsam (Abb. 14).

Bei den Faserfiltern mit Aktivkohleeinlagerungen ergab sich eine der Spülluftmenge im untersuchten Bereich ungefähr proportionale Abnahme, die beim Filter Nr. 509 mit dem geringeren Aktivkohlegehalt stärker war als beim Filter Nr. 508: Eine Desorption von 2 % der ursprünglich vorhandenen Filteraktivität wurde beim Filter Nr. 509 durch etwa 10 m^3 Spülluft, beim Filter Nr. 508 durch etwa 40 m^3 Spülluft hervorgerufen.

Bei Aktivkohlegranulatpatronen (mit hoher Aktivkohlebelegung) war eine Desorption nicht nachweisbar (vgl. auch (12)). So konnte bei einer Filterpatrone mit 60 g Aktivkohlegranulat nach Durchsaugen von 50 m^3 Spülluft noch keine Desorption festgestellt werden. Möglicherweise wandert jedoch die zunächst auf den oberen Granulatschichten abgeschiedene Filterkontamination in Strömungsrichtung, so daß sich durch Verschieben der ursprünglich exponentiellen Tiefenverteilung des Jod auf dem Filter bei sehr langen Spülvorgängen ebenfalls Desorptionen ergeben könnten.

4. Zusammenfassung

Verschiedene Aktivkohlefilter (Aktivkohlegranulatpatronen, Aktivkohlepapierfilter, mit Aktivkohlepulver belegte Aerosolfilter) wurden auf ihre Adsorptionseigenschaften für gasförmiges Jod (J_2) untersucht. Es ergab sich eine exponentielle Abhängigkeit der Durchlässigkeit von der Aktivkohleflächenbelegung des Filters. Der Massenadsorptionskoeffizient ist eine Potenzfunktion der Anströmgeschwindigkeit. Außerdem wurde die Adsorptionskapazität und die Abnahme des Filterwirkungsgrades mit steigender Vorbelastung der Aktivkohle mit Jod oder adsorbierbaren Fremdgasen gemessen.

Für die praktische Anwendung als Meßfilter in Luftüberwachungsanlagen erwiesen sich die geprüften Filtermedien als gut geeignet. Auch als Reinigungsfilter läßt sich die Aktivkohle bei geeigneter Auslegung der Filteranlagen verwenden. Die Ergebnisse der Untersuchungen erlauben die optimale Bemessung der Aktivkohlebelegung und des Durchmessers der Filter, der Anströmgeschwindigkeit bzw. des Volumendurchsatzes und der Filterstandzeiten.

Bei stark verunreinigter Luft empfiehlt sich die Verwendung von Granulatpatronen mit genügend großer Aktivkohlemenge, um eine hohe Adsorptionskapazität zu erreichen. Aerosole sollten dabei durch ein Vorfilter abgeschieden werden.

Unter normalen Kontaminationsverhältnissen der Luft, z.B. in der freien Atmosphäre, bietet die kontinuierliche Überwachung mit Filterbandgeräten meßtechnische Vorteile. Die normalen Filteranlagen, z.B. die bei uns verwendeten SchrittfILTERGERÄTE (28), lassen sich für die Jodmessung verwendbar machen, indem die für normale Aerosole verwendeten Absolutfilter mit Aktivkohlepulver vorbestaubt werden⁺).

Die Aktivkohlepapierfilter Nr. 508 und 509 von Schleicher u. Schüll werden bisher nicht in der für Filterbänder benötigten Länge gefertigt. Sie eignen sich daher nur für Fixfilteranlagen.

⁺) Eine Anlage zur Vorbehandlung von Aerosolfilterbändern wird zur Zeit bei uns entwickelt.

Literaturverzeichnis

- (1) K. J. Vogt, G. Schröder
Nachweis von radioaktivem Jod in der Atmosphäre
(Überblick über die einschlägige Literatur)
Interner Bericht Nr. 78, ZAbt. ST der KFA Jülich (1964)
- (2) K. Kasperek, K. J. Vogt
Hinweise für die Beurteilung der Filterung und Ausbreitung
kontaminierter Abluft (Jod, Edelgase)
Interner Bericht Nr. 80, ZAbt. ST der KFA Jülich (1964)
- (3) J. Z. Holland
Physical Origin and Dispersion of Radioiodine
Health Physics, 9, 1095 (1963)
- (4) R. W. Perkins
Physical and Chemical Form of I-131 in Fallout
Health Physics, 9, 1113 (1963)
- (5) A. C. Chamberlain, A. E. Eggleton, W. J. Megaw, J. B. Morris
Physical Chemistry of Iodine and Removal of Iodine from
Gas Streams
aus: Reactor Science and Technology 17
Pergamon Press Oxford 1963
- (6) Hanford Works, Applied Research Unit
Removal of Iodine Vapor from Gas Streams by Sorption on Charcoal
HW - 26113, 1952
- (7) R. L. Cardozo, P. Dejonghe
The Removal of Gaseous Iodine from Air with Particular Reference
to Reactor Accidents
BLG - 53, 1960
- (8) R. E. Adams, W. E. Browning
Removal of Radioiodine from Air Streams by Activated Charcoal
ORNL - 2872, 1960

- (9) A.D. Little Inc.
Halogen Collector Test Program
HW - 65587, ALI - 54, 1960
- (10) L. Silverman, R. Dennis, E. Kristal, F. Stein
Iodine Collection Studies
aus: AEC Air Cleaning Conference VI, 1959
TID - 7593, 1960
- (11) C.W. Sill, J.K. Flygare, Jr.
Iodine Monitoring at the National Reactor Testing Station
Health Physics, 2, 261 (1960)
- (12) D. McConnon
Radioiodine Sampling with Activated Charcoal Cartridges
HW - 77126, 1963
- (13) J.B. Morris, C.H. Rumary
Tests on Adsorbers for Iodine at Low Concentrations
AERE - R - 4219, 1963
- (14) S. Kitani and H. Ezure
Adsorption of Radioactive Iodine Vapor in Air Streams on Molecular
Sieves 5A
J. At. Energy Soc. Japan, 3, 787 (1961)
Referiert in: W.E. Browning, Removal of Radioiodine from Gases
Nucl. Safety, 4, No 2, 84 (1962)
- (15) R.E. Adams, W.E. Browning
Removal of Iodine from Gas Steams
aus: AEC Air Cleaning Conference VII, 1961
TID - 7627
- (16) A.R. Bancroft, L.C. Watson, R. Hewett
Tests on Collectors to Remove Iodine from Ventilation Air
CRCE - 981, 1960

- (17) R. J. Begley
Liquid Sodium Absorbs Gaseous Iodine
Nucl. 20, Nr. 10, 100 (1962)
- (18) Centre d' Etude de L' Energie Nucleaire
Treatment of Radioactive Wastes
Euraec - 25, 1960
- (19) R. E. Adams, W. E. Browning
Removal of Radioiodine from Air-Stream Mixtures
CF-60-11-39, 1960
- (20) A. C. Chamberlain, A. E. I. Eggleton, W. J. Megaw, J. B. Morris
Removal of Radioactive Iodine Vapour from Air
AERE - R 3412, 1960
- (21) A. C. Chamberlain, E. D. Dyson
The Dose to the Trachea and Bronchi from the Decay Products
of Radon and Thoron
Brit. J. Radiol. 29, 317 (1956)
- (22) A. C. Chamberlain,
Experiments on the Deposition of Iodine-131 Vapour on to Surfaces
from an Airstream
Phil. Mag. 44, 1145 (1953)
- (23) Landolt-Börnstein 2, 3. Teil
Schmelzgleichgewichte und Grenzflächenerscheinungen, S. 495 ff
Springer Verlag, Berlin-Göttingen-Heidelberg 1956
- (24) S. H. Maron, C. F. Prutton
Principles of Physical Chemistry
McMillan Comp., New York 1958
- (25) P. Demougin
L' Absorption de la Vapour d' Iode par le Charbon Actif e le Gel
de Silice
Comptes Rendus 200, 662 (1935)

- (26) C. Pierce, J. W. Wiley, R. N. Smith
Capillarity and Surface Area of Charcoal
J. Phys. Colloid Chem. 53, 669 (1949)
- (27) Ullmanns Encyclopädie der technischen Chemie 1
Urban und Schwarzenberg, München 1951
- (28) W. Schröck-Vietor
Eine Methode zur Messung und Analyse des radioaktiven Aerosols
der Luft
Kerntechnik 4, 372 (1962)

Verzeichnis der Abbildungen

- | | |
|---------|---|
| Abb. 1 | Schema der Versuchsanordnung |
| Abb. 2 | Kontaminationsverlust in Abhängigkeit vom Luftdurchsatz |
| Abb. 3 | Durchlässigkeit von Aktivkohlegranulat K 229 für gasförmiges Jod (J_2) in Abhängigkeit von der Schichtdicke der Aktivkohle und von der Anströmgeschwindigkeit |
| Abb. 4 | Massenadsorptionskoeffizient von Aktivkohlefiltern für gasförmiges Jod (J_2) in Abhängigkeit von der Anströmgeschwindigkeit |
| Abb. 5 | Durchlässigkeit der Aktivkohlepapierfilter Nr. 508 und 509 für gasförmiges Jod (J_2) in Abhängigkeit von der Anströmgeschwindigkeit |
| Abb. 6 | Adsorptionskapazität von Aktivkohle für verschiedene Stoffe in Abhängigkeit von ihrer kritischen Temperatur |
| Abb. 7 | Jodadsorption in Aktivkohlegranulat in Abhängigkeit vom Jodangebot |
| Abb. 8 | Jodadsorption in Aktivkohlepapierfilter 508 in Abhängigkeit vom Jodangebot |
| Abb. 9 | Filterwirkungsgrad von Aktivkohlegranulat in Abhängigkeit vom Jodangebot (integraler Filterwirkungsgrad) |
| Abb. 10 | Filterwirkungsgrad des Aktivkohlepapierfilters 508 in Abhängigkeit vom Jodangebot (integraler Filterwirkungsgrad) |
| Abb. 11 | Filterwirkungsgrad von Aktivkohlegranulat in Abhängigkeit von der Vorbelastung des Filters durch Jod (differentieller Filterwirkungsgrad) |
| Abb. 12 | Filterwirkungsgrad des Aktivkohlepapierfilters 508 in Abhängigkeit von der Vorbelastung des Filters durch Jod (differentieller Filterwirkungsgrad) |
| Abb. 13 | Filterwirkungsgrad für Jod in Abhängigkeit von der Vorbelastung des Filters durch Aerosole und adsorbierbare Fremdgase in der Luft |
| Abb. 14 | Desorption von Jod in Abhängigkeit von der durch das Aktivkohlefilter durchgesaugten Luftmenge. |

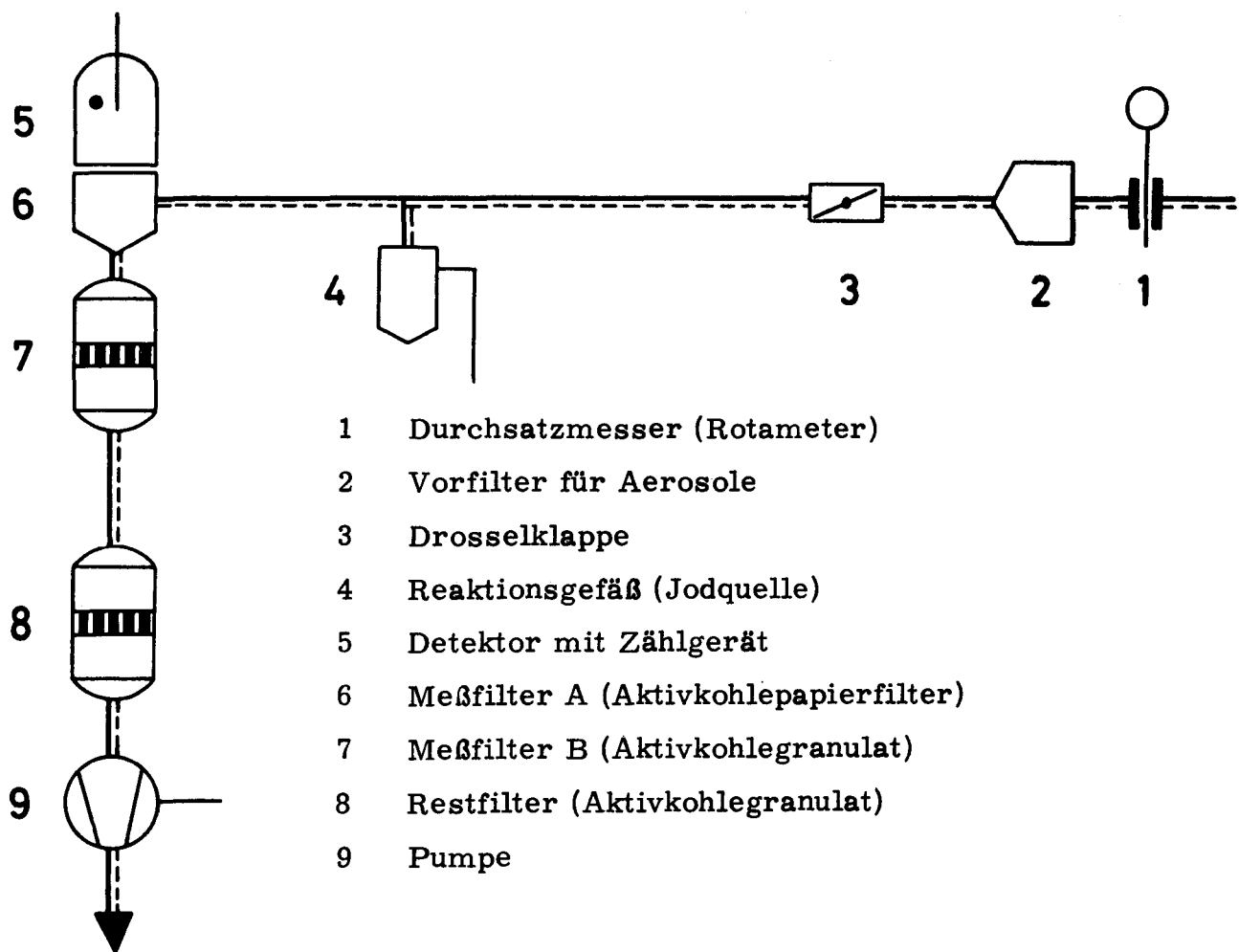


Abb. 1: Schema der Versuchsanordnung

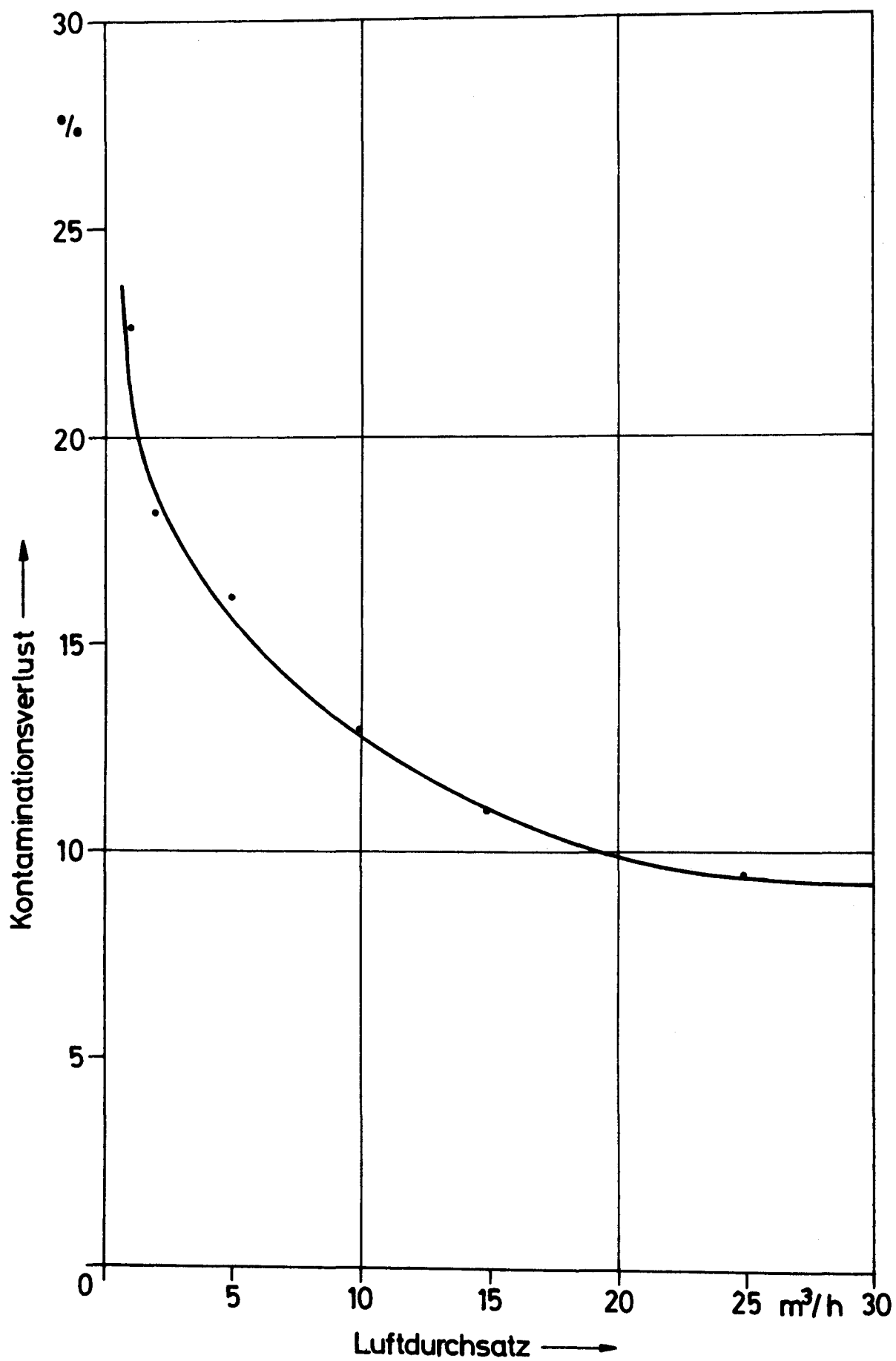


Abb. 2: Kontaminationsverlust in Abhängigkeit vom Luftdurchsatz

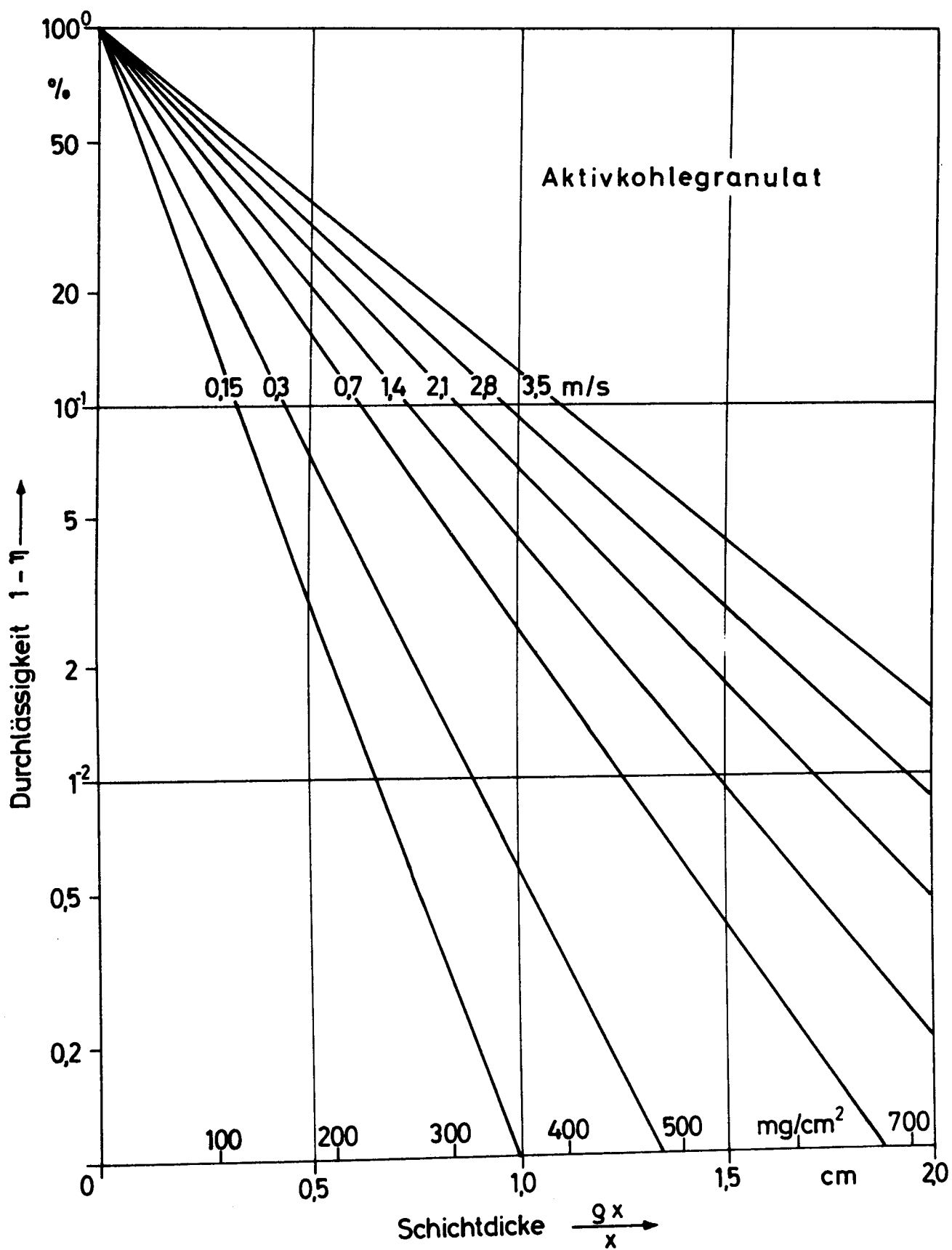


Abb. 3: Durchlässigkeit von Aktivkohlegranulat K 229 für gasförmiges Jod (J_2) in Abhängigkeit von der Schichtdicke der Aktivkohle und von der Anströmgeschwindigkeit

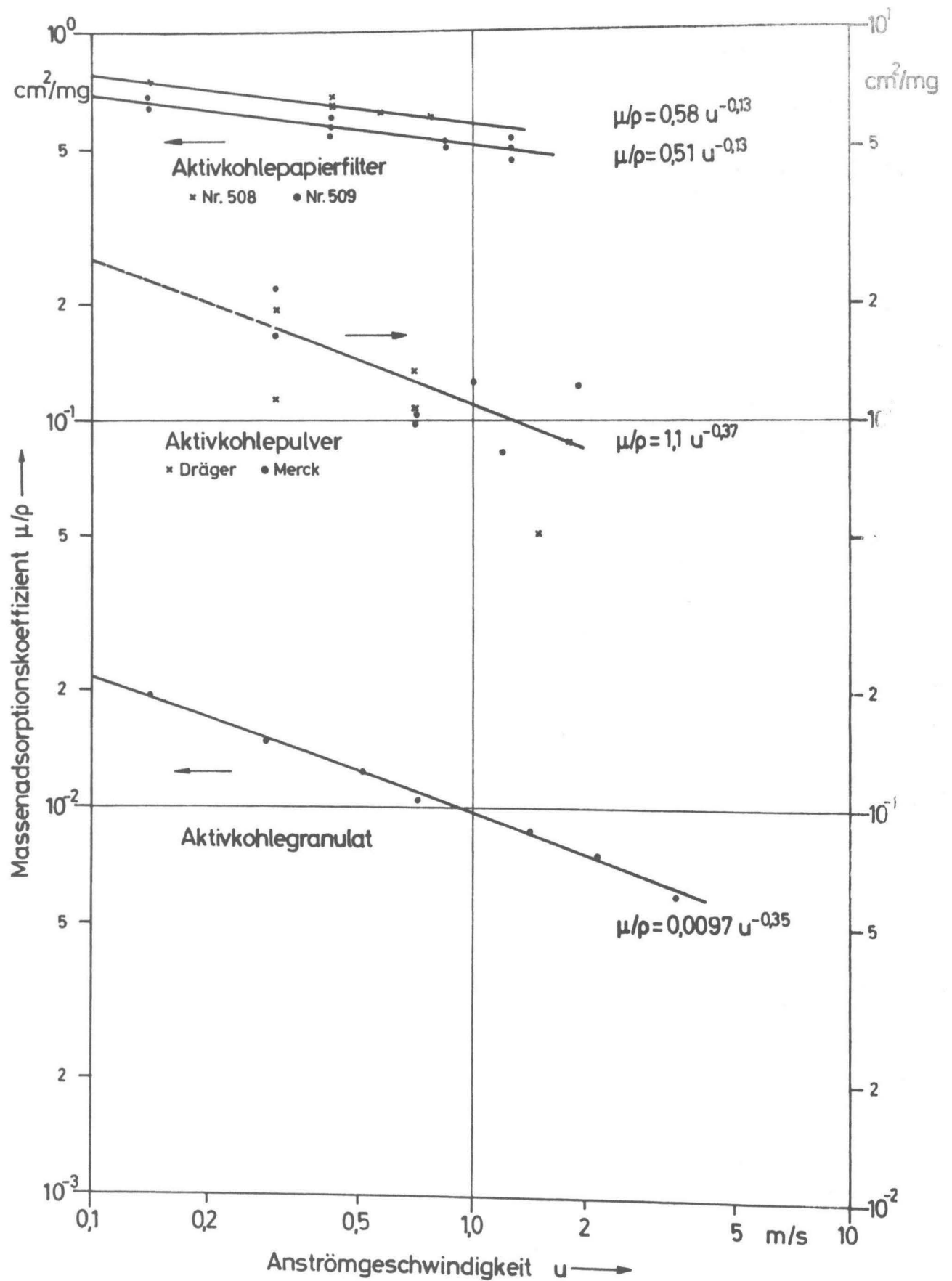


Abb. 4: Massenadsorptionskoeffizient von Aktivkohlefiltern für gasförmiges Jod (J_2) in Abhängigkeit von der Anströmgeschwindigkeit

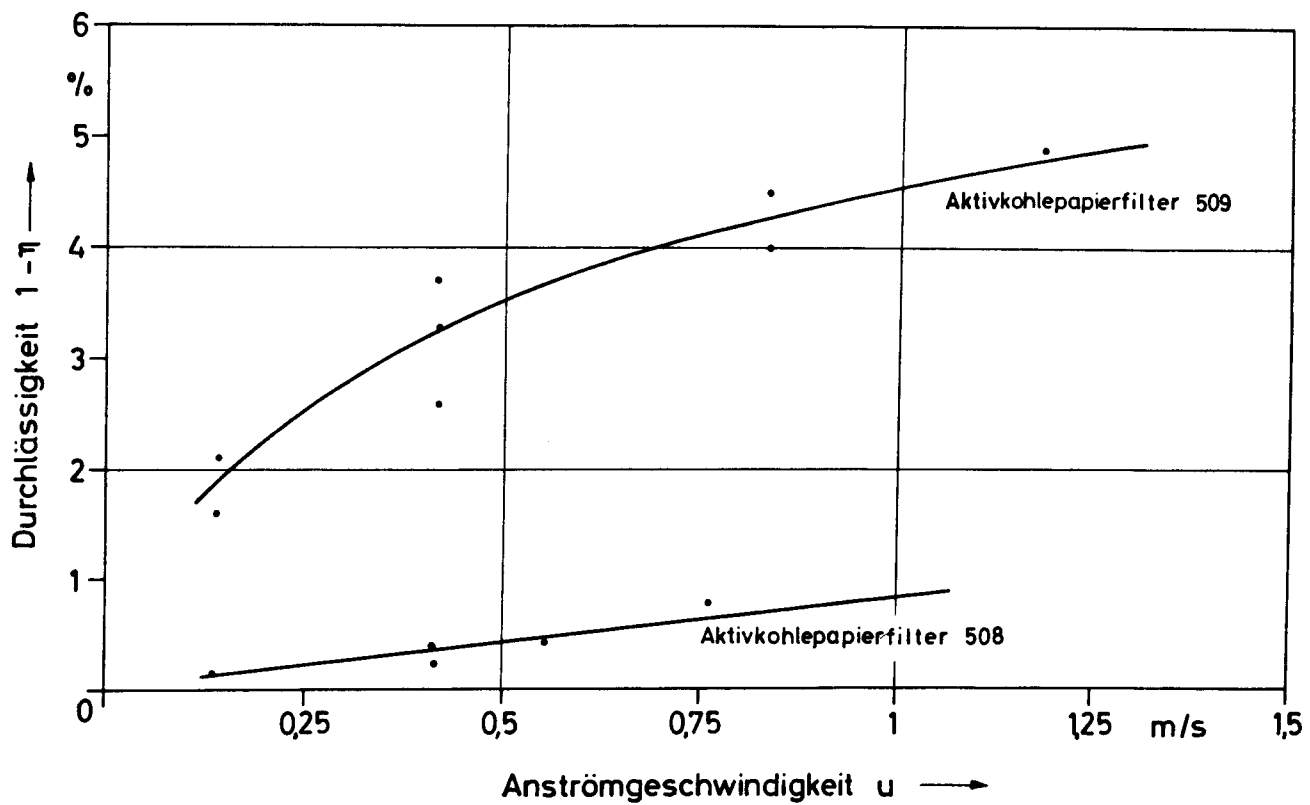


Abb. 5: Durchlässigkeit der Aktivkohlepapierfilter Nr. 508 und 509 für gasförmiges Jod (J_2) in Abhängigkeit von der Anströmgeschwindigkeit

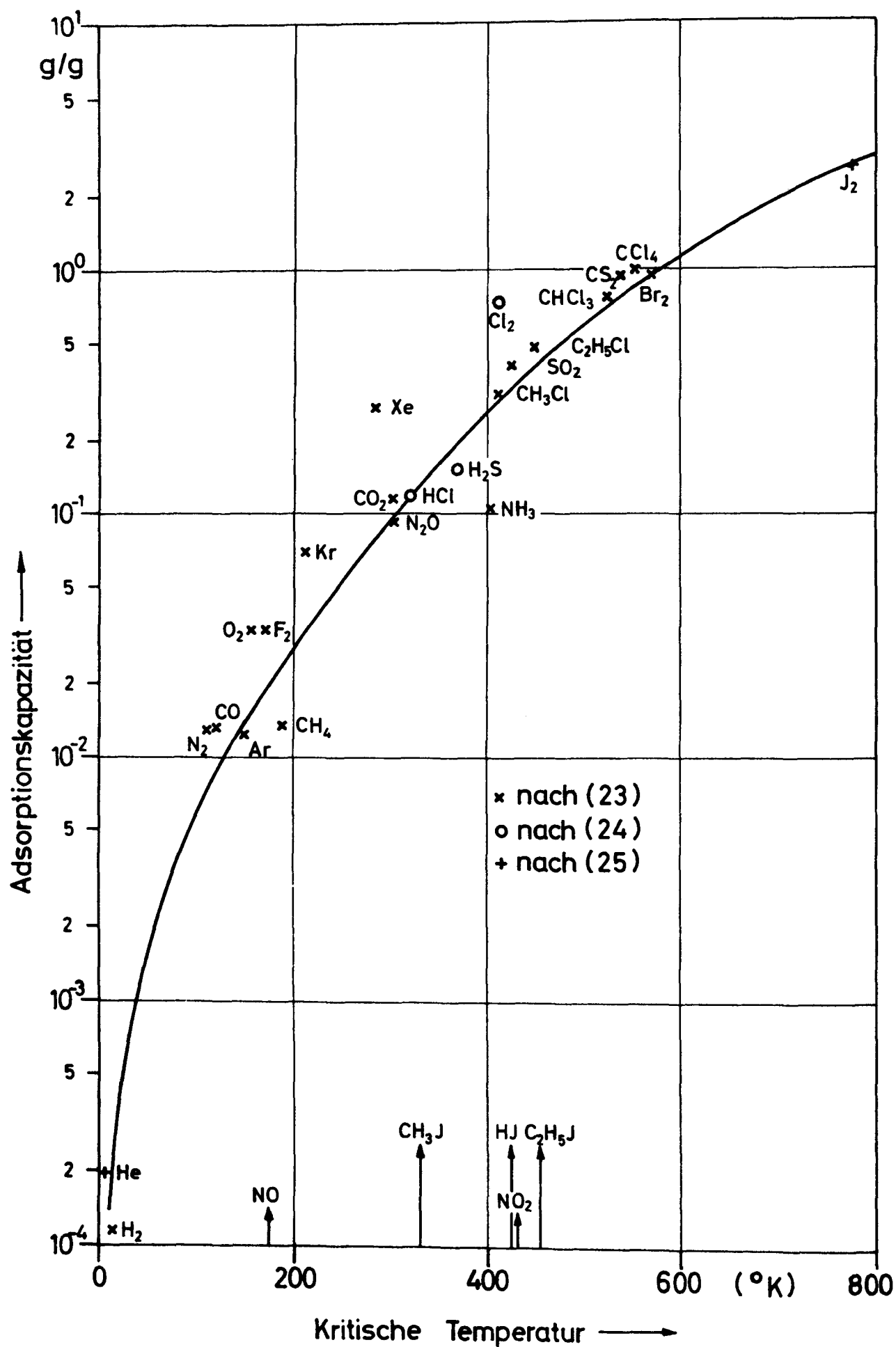


Abb. 6: Adsorptionskapazität von Aktivkohle für verschiedene Stoffe in Abhängigkeit von ihrer kritischen Temperatur

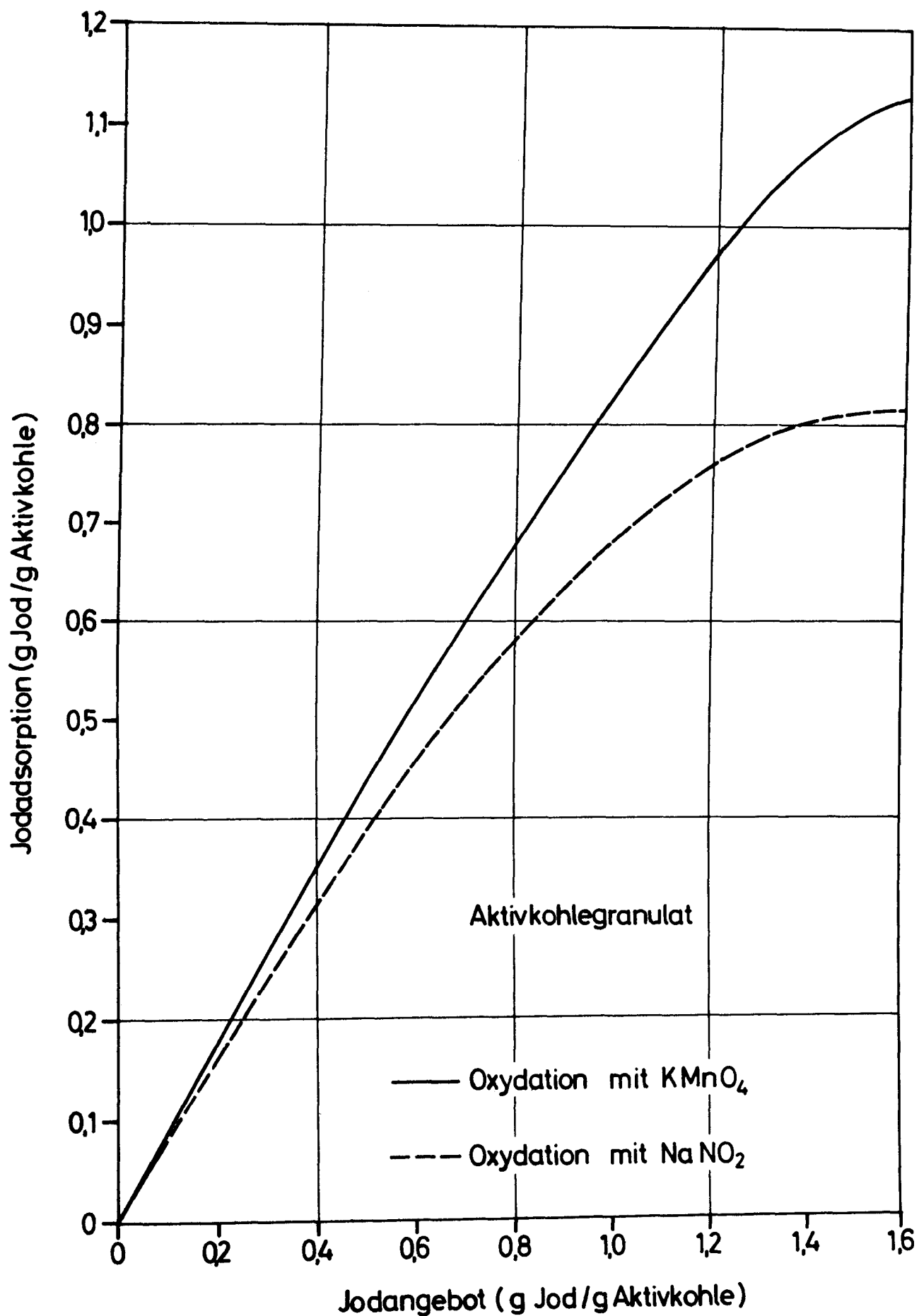


Abb. 7: Jodadsorption in Aktivkohlegranulat in Abhängigkeit vom Jodangebot

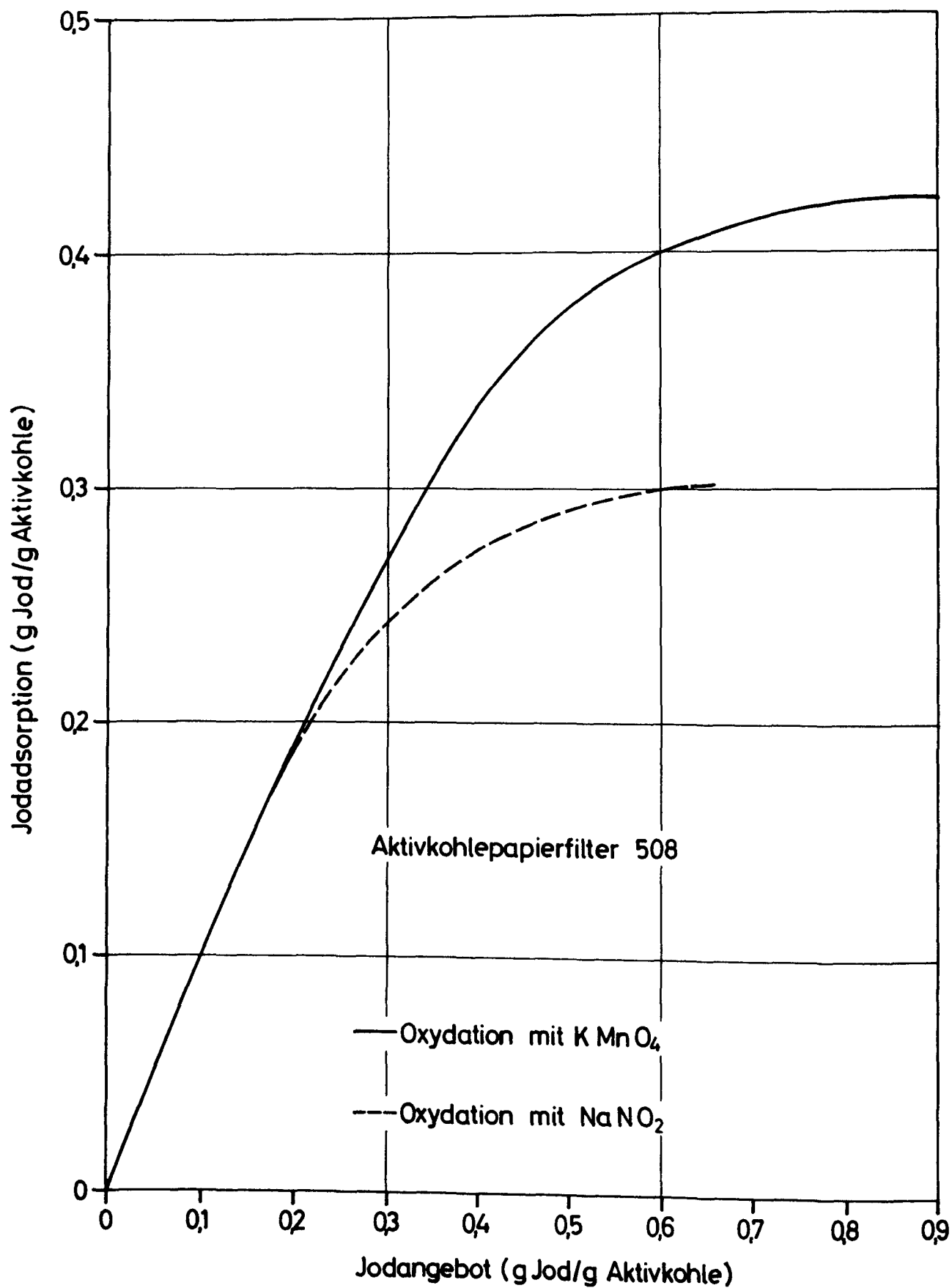


Abb. 8: Jodadsorption in Aktivkohlepapierfilter Nr. 508 in Abhängigkeit vom Jodangebot

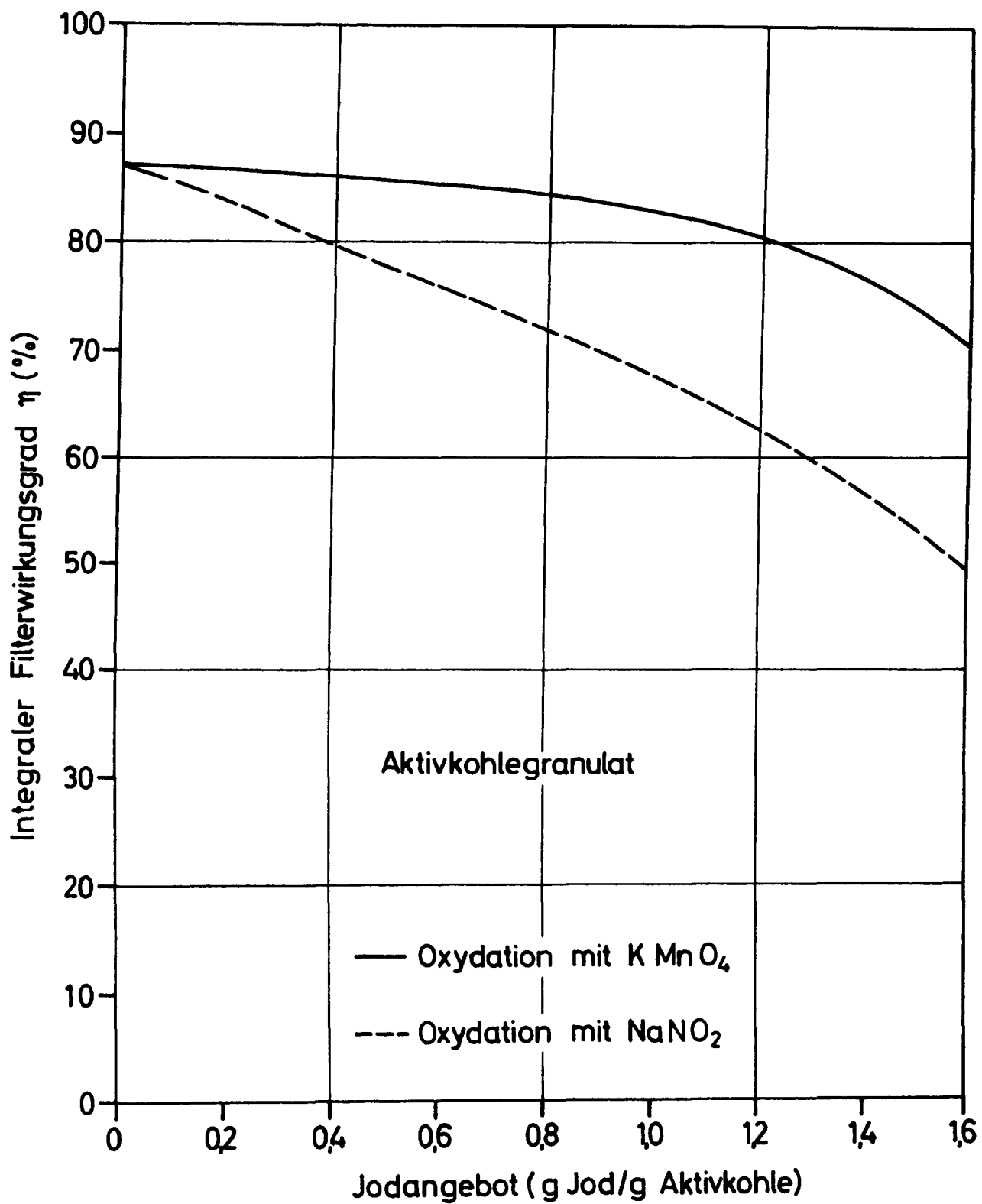


Abb. 9: Filterwirkungsgrad von Aktivkohlegranulat in Abhängigkeit vom Jodangebot (integraler Filterwirkungsgrad)

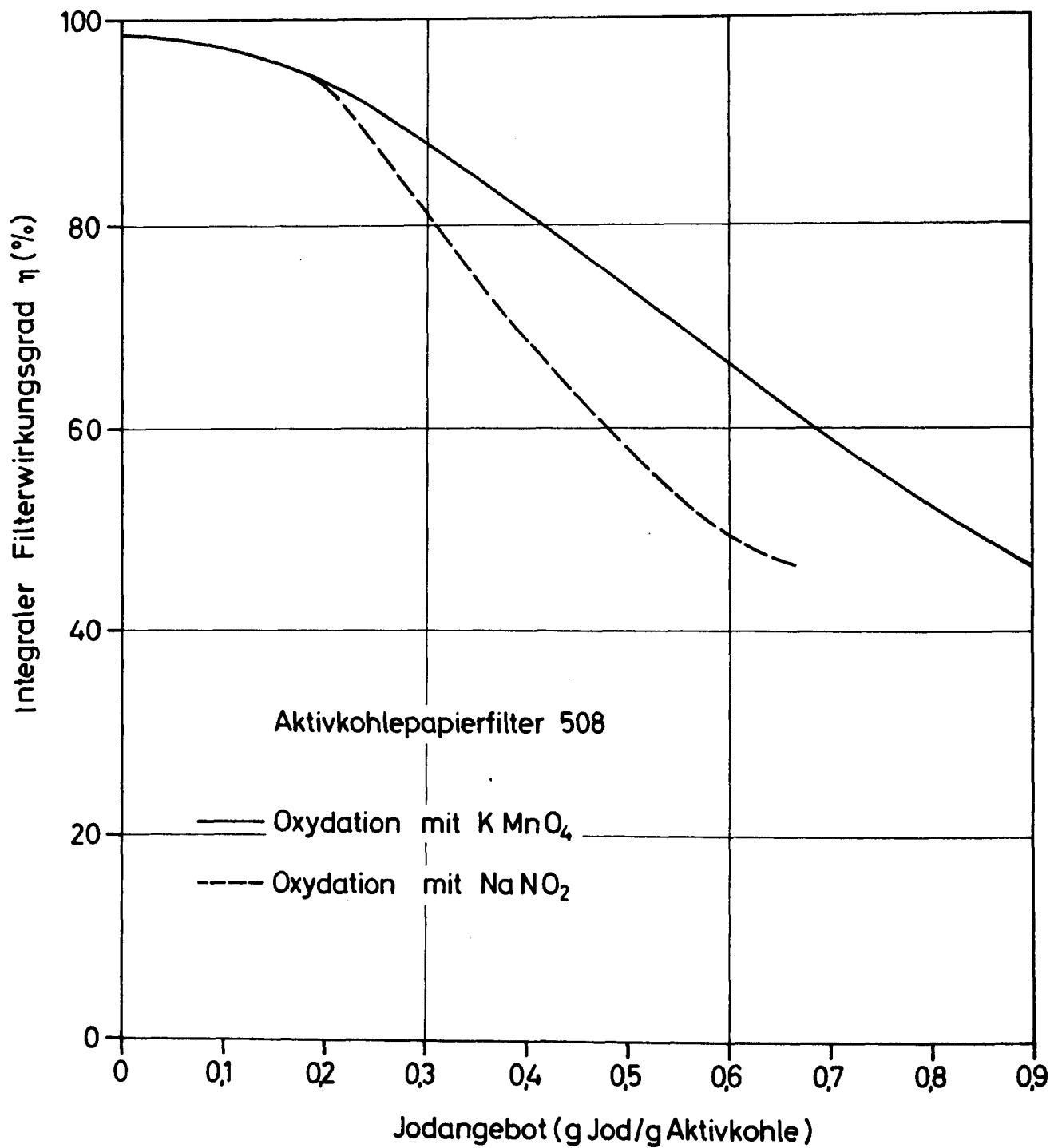


Abb. 10: Filterwirkungsgrad des Aktivkohlepapierfilters Nr. 508 in Abhängigkeit vom Jodangebot (integraler Filterwirkungsgrad)

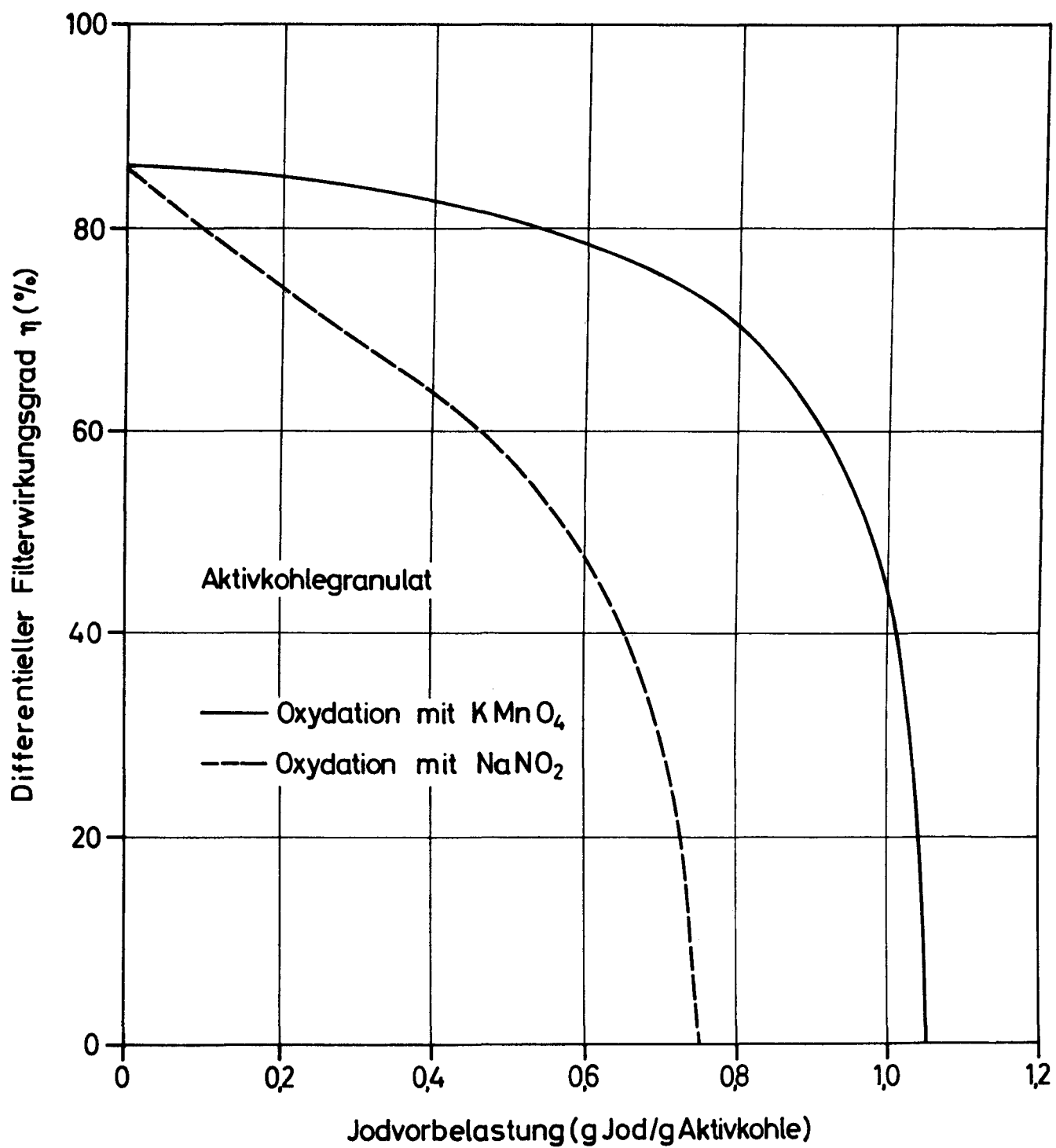


Abb. 11: Filterwirkungsgrad von Aktivkohlegranulat in Abhängigkeit von der Vorbelastung des Filters durch Jod (differentieller Filterwirkungsgrad)

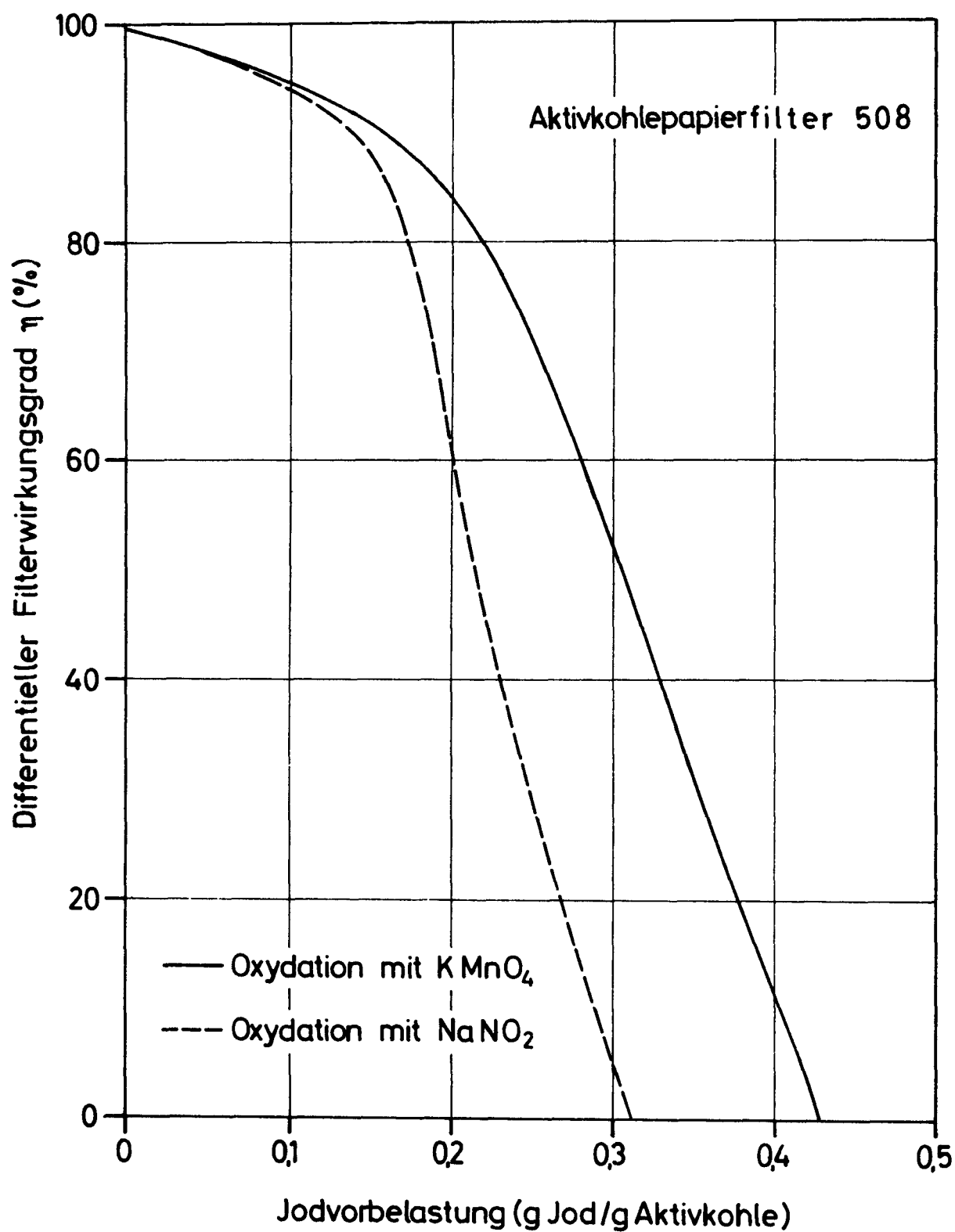


Abb. 12: Filterwirkungsgrad des Aktivkohlepapierfilters Nr. 508 in Abhängigkeit von der Vorbelastung des Filters durch Jod (differentieller Filterwirkungsgrad)

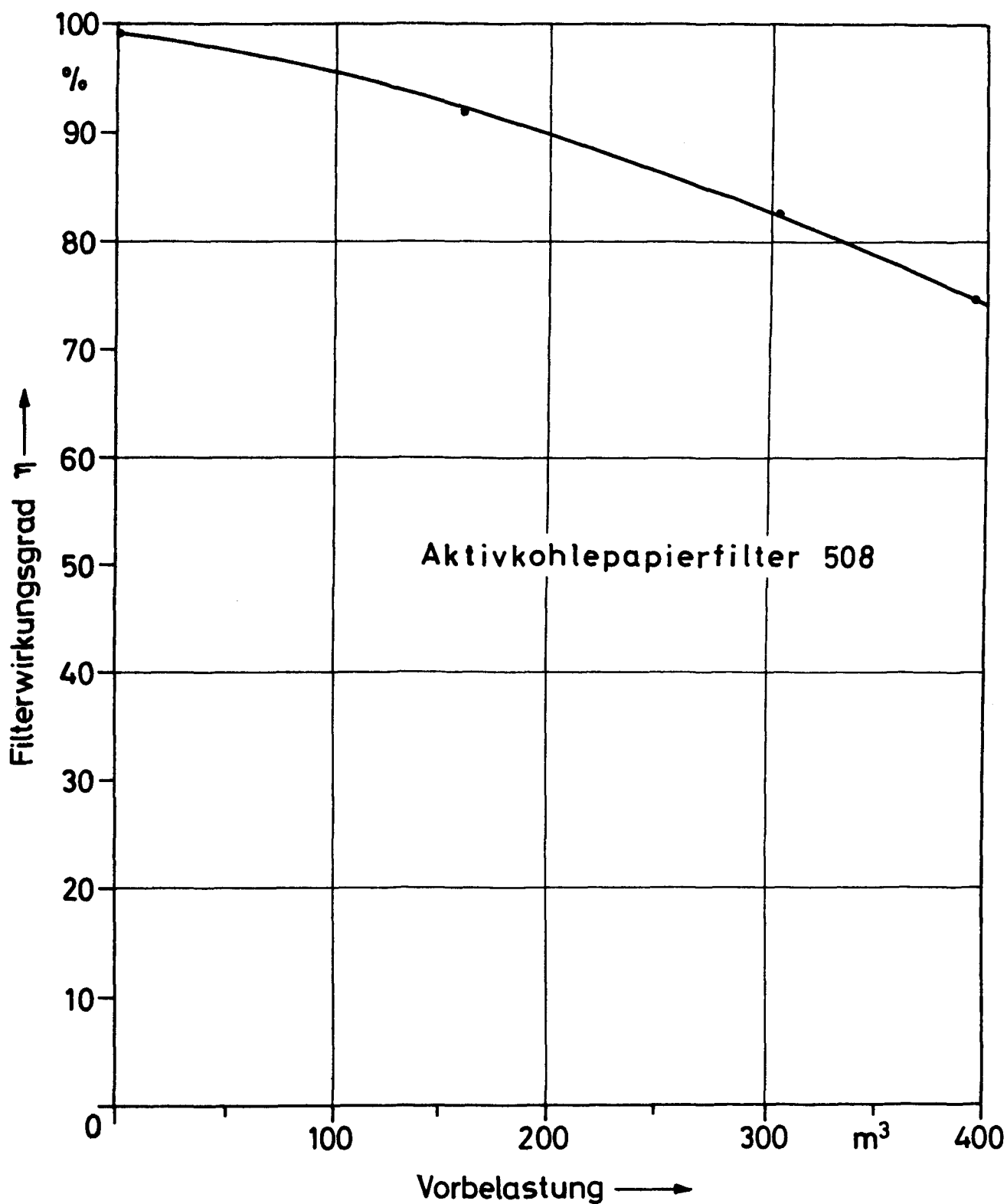


Abb. 13: Filterwirkungsgrad für Jod in Abhängigkeit von der Vorbelastung des Filters durch Aerosole und adsorbierbare Fremdgase in der Luft

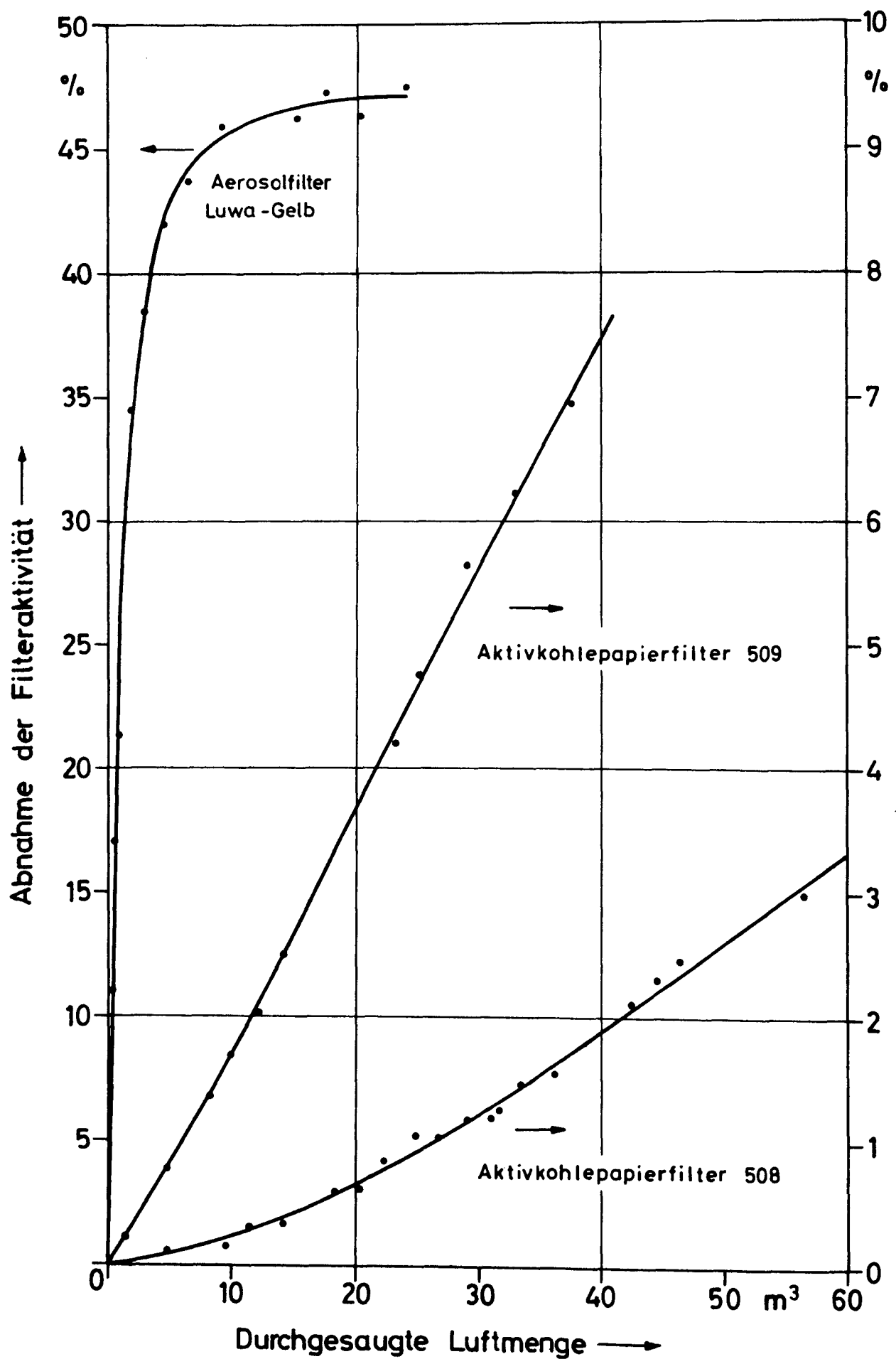


Abb. 14: Desorption von Jod in Abhängigkeit von der durch das Aktivkohlefilter durchgesaugten Luftmenge